

Titre: Modélisation environnementale régionalisée à l'échelle mondiale de l'acidification terrestre et aquatique dans le cadre de l'évaluation des impacts du cycle de vie
Title:

Auteur: Pierre-Olivier Roy
Author:

Date: 2012

Type: Mémoire ou thèse / Dissertation or Thesis

Référence: Roy, P.-O. (2012). Modélisation environnementale régionalisée à l'échelle mondiale de l'acidification terrestre et aquatique dans le cadre de l'évaluation des impacts du cycle de vie [Thèse de doctorat, École Polytechnique de Montréal]. PolyPublie. <https://publications.polymtl.ca/1000/>
Citation:

 **Document en libre accès dans PolyPublie**
Open Access document in PolyPublie

URL de PolyPublie: <https://publications.polymtl.ca/1000/>
PolyPublie URL:

Directeurs de recherche: Manuele Margni, & Louise Deschênes
Advisors:

Programme: Génie chimique
Program:

UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

MODÉLISATION ENVIRONNEMENTALE RÉGIONALISÉE À
L'ÉCHELLE MONDIALE DE L'ACIDIFICATION TERRESTRE ET
AQUATIQUE DANS LE CADRE DE L'ÉVALUATION DES IMPACTS
DU CYCLE DE VIE

PIERRE-OLIVIER ROY

DÉPARTEMENT DE GÉNIE CHIMIQUE
ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

THÈSE PRÉSENTÉE EN VUE DE L'OBTENTION
DU DIPLÔME DE PHILOSOPHIAE DOCTOR
(GÉNIE CHIMIQUE)
DÉCEMBRE 2012

UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

Cette thèse intitulée:

MODÉLISATION ENVIRONNEMENTALE RÉGIONALISÉE À L'ÉCHELLE
MONDIALE DE L'ACIDIFICATION TERRESTRE ET AQUATIQUE DANS LE
CADRE DE L'ÉVALUATION DES IMPACTS DU CYCLE DE VIE

présentée par : ROY Pierre-Olivier

en vue de l'obtention du diplôme de : Philosophiae doctor

a été dûment acceptée par le jury d'examen constitué de :

M.PERRIER, Michel, Ph.D., président

M.MARGNI, Manuele, Ph.D., membre et directeur de recherche

Mme DESCHÊNES, Louise, Ph.D., membre et codirectrice de recherche

M. TAVARES, Jason-Robert, Ph.D., membre

Mme POTTING, José, Ph.D., membre

DÉDICACE

À mon père qui m'a fourni les bases pour réussir,

À mon amour qui doit m'endurer tous les jours

Et à tous ceux qui m'ont dit que je n'arriverais à rien dans la vie.

«Que Dieu ait pitié de nous qui sommes

à la merci des ingénieurs »

Ian Malcom, Jurassic Parc, 1993

REMERCIEMENTS

Les années passées au doctorat n'ont pas toujours été faciles. Une odysée formatrice remplie de hauts et de bas. Plusieurs personnes ont été présentes durant ce parcours et je tiens à leur rendre hommage.

Je voudrais remercier Louise d'avoir fait confiance à un jeune tout droit sorti du baccalauréat, avec peu d'expérience en recherche et complètement grippé, de surcroît, le jour où elle m'a accueilli au CIRAIG. Je voudrais aussi la remercier, et surtout la féliciter, de son attitude envers ses étudiants : ouverte, attentive et surtout dédiée. Je salue également sa capacité de nous laisser trouver notre propre voix dans nos projets en limitant, le plus possible, les influences et contraintes imposées par des sources externes.

Manuele, d'emblée il faut admettre que ça n'a pas dû être toujours facile de composer avec mon caractère bouillant mais sache que se fut toujours un honneur, pour moi, de collaborer avec toi. Tes commentaires et critiques constructifs m'ont poussé à persévérer et je t'en suis énormément reconnaissant. Mais au final, c'est bien plus que ta contribution scientifique, non-négligeable, qui aura eu un impact sur moi. Au final, tu auras réussi à me rendre plus posé et plus patient. Bref, de faire de moi une meilleure personne. Je (et les gens autour de moi également) t'en suis extrêmement reconnaissant.

I would also like to thank Mark, first, for his hospitality and, second, for his dedication to the project even though I was not one of his students. I thank fate that our path crossed because without his expertise and wise guidance, the project would not have been what it is today.

J'aimerais remercier les partenaires industriels du CIRAIG pour leur soutien financier.

Je remercie, également, tous les membres du CIRAIG; un groupe travaillant, accueillant et chaleureux où règne l'esprit d'équipe et prône l'ambiance familiale.

Un merci plus personnel à mon amour qui m'a soutenu et a cru en moi alors que je ne croyais plus en mes capacités. Finalement, un grand merci à mon père pour son amour inconditionnel et de m'avoir réconforté, par sa seule présence, pendant toutes ces années.

RÉSUMÉ

L'acidification des milieux terrestres et aquatiques est principalement causée par des émissions de SO_2 , NO_x et de NH_3 à l'atmosphère. Ces polluants, une fois émis, sont transportés sur de longues distances, interagissent avec les composantes de l'atmosphère avant de retomber au niveau du sol causant un changement d'acidité dans les milieux récepteurs (i.e. terrestres et/ou aquatiques). Pour presque toute espèce vivante, il existe une plage de pH optimale pour le maintien de la vie. Une déviation de cet optimum est dommageable pour cette espèce et engendre un changement de la biodiversité dans les écosystèmes.

L'analyse du cycle de vie (ACV) est un outil d'aide de prise à la décision qui permet d'évaluer les impacts potentiels d'un produit pour de nombreuses catégories d'impacts (e.g. changement climatique, toxicité, acidification). Pour ce faire, les méthodes d'évaluation des impacts du cycle de vie (ACVI) ont recours à des facteurs de caractérisation (FCs). Un FC se définit comme étant la représentation mathématique de la chaîne de cause à effet d'une catégorie d'impact donnée. En considérant le cadre d'évaluation des impacts reliés aux émissions atmosphériques (Udo de Haes et al., 2002), les FCs de la catégorie d'impact acidification ont été calculés par la somme des produits des facteurs de devenir atmosphérique associés à un lieu d'émission, de facteurs de la sensibilité des sols ou de facteur de devenir des milieux récepteurs (terrestres et aquatiques) associés aux milieux récepteurs et de facteurs d'effet également associés aux milieux récepteurs. Le facteur de devenir atmosphérique évalue la relation entre la quantité de polluant émis et la quantité déposée en un lieu donnée. La sommation de ces derniers représente la fraction totale d'une émission transférée à l'ensemble des milieux récepteurs. Le facteur de sensibilité ou le facteur de devenir des milieux récepteurs évalue la stabilité (mesurée, par exemple, par le pH) des milieux récepteurs (terrestre et/ou aquatique) suivant les dépositions de substances acidifiantes. Le facteur d'effet évalue le changement de biodiversité (e.g. perte d'espèces) dû au changement de la qualité des milieux récepteurs suite aux dépositions acides. Ces facteurs sont calculés à l'aide de plusieurs modèles mathématiques basés sur les sciences naturelles et décrivent la succession de processus chimiques, physiques et biologiques de la chaîne cause-effet. Il existe deux approches de calculs pour les FCs : une approche dite problème et une approche dite dommage. Cette dernière approche modélise l'ensemble de la chaîne cause-effet jusqu'aux dommages. La première approche (problème) ne modélise qu'une partie de la chaîne cause-effet;

liant, par exemple, l'émission jusqu'à la déposition dans les milieux récepteurs ou jusqu'au changement de la qualité des écosystèmes. En théorie, cependant, les FCs orientés problèmes sont définis comme un compromis maximisant la pertinence environnementale (pour la prise de décision) et minimisant l'incertitude du modèle de caractérisation.

Plusieurs limitations ont été identifiées dans les méthodes ACVI actuelles. (i) La plupart des FCs retrouvés dans les méthodes ACVI actuelles sont basés sur de la modélisation réalisée à une échelle continentale et sont de types problèmes. Cependant, ces FCs ne sont représentatifs que d'un lieu géographique circonscrit (i.e. Canada, États-Unis, Europe ou Japon). Lors de la caractérisation des émissions du cycle de vie, l'hypothèse implicite posée a pour conséquence que toutes les émissions sont considérées comme ayant lieux dans ce lieu géographique circonscrit (e.g. une émission de 1 kg de SO₂ en Chine est équivalent à 1 kg SO₂ en Europe). Avec la globalisation des marchés, cette hypothèse s'avère inexacte. (ii) Le recours à la modélisation basée sur une échelle continentale est problématique puisque les émissions voyageant hors du contexte d'application ne sont pas considérées. Bien que cette déposition transcontinentale représente, probablement, une faible proportion de la déposition totale, il est possible que les dépôts acides choient sur des milieux récepteurs sensibles causant un impact important. (iii) Il existe un manque de cohérence entre les FCs de l'acidification terrestre de types problème et dommage. En effet, les FCs problèmes sont basés sur un indicateur de type « charge critique » qui, pour le moment, ne peut être lié à une modélisation subséquente vers un indicateur de la perte de biodiversité. (iv) Il n'existe pas de FCs régionalisés basés sur le devenir atmosphérique, le devenir des milieux récepteurs et l'effet pour l'acidification aquatique. Par conséquent, les impacts potentiels de l'acidification aquatique sont négligés en ACV. (v) Les capacités de modélisation de l'acidification terrestre sont limitées à l'échelle nationale et celles de l'acidification aquatique sont inexistantes. (vi) Bien que la variabilité spatiale des FCs est généralement évaluée, l'incertitude inhérentes aux FCs ne l'est pas.

Sur la base de ces constats, les objectifs principaux ont été définis:

1. Créer un modèle de caractérisation régionalisé pour l'acidification terrestre et aquatique sur la base de modèles sophistiqués de devenir atmosphérique, de la sensibilité/devenir des milieux récepteurs et d'effet à une échelle mondiale.

2. Générer des facteurs de devenir atmosphérique permettant de considérer la déposition transcontinentale.
3. Générer des facteurs de sensibilité terrestre compatible avec une phase subséquente vers un indicateur de la perte de biodiversité.
4. Développer un modèle permettant d'évaluer le devenir des milieux récepteurs pour l'acidification aquatique pouvant être combiné aux courbes dose-réponses, illustrant la perte de biodiversité, existantes.
5. Générer des FCs régionalisés, de type dommage, à l'échelle globale pour l'acidification terrestre et aquatique.
6. Évaluer l'incertitude et la variation spatiale reliées aux FCs développés afin de définir et générer des FCs de type problème à l'échelle globale et supporter l'interprétation lors d'étude ACV.

Pour ce faire, il fut nécessaire de créer un cadre méthodologique identifiant les indicateurs couvrant l'intégralité de chaîne cause-effet et les étapes de modélisation à développer pour obtenir des facteurs de devenir atmosphérique régionaux reliant l'émission à la déposition, des facteurs de sensibilité des sols reliant une déposition atmosphérique à un changement de pH des sols, des facteurs de devenir des milieux récepteurs (pour l'acidification aquatique) reliant une déposition atmosphérique à un changement de pH dans les lacs et des facteurs d'effet (terrestres et aquatiques) afin de calculer des changements de biodiversité des espèces biologiques en fonction d'un changement de pH. Tous développements ont été menés dans le but de calculer des FCs régionalisés dommages, à l'échelle globale, et d'en évaluer la variabilité spatiale et l'incertitude.

Un modèle de dispersion et de chimie atmosphérique mondial a été sélectionné pour servir de base à la génération de facteurs de devenir atmosphérique. À l'aide de bilans de masse, il a été possible de créer une matrice source-récepteur, dont les éléments sont des facteurs de devenir. Les résultats ont montré que la déposition transcontinentale représentait, en moyenne, près de 4% de la déposition totale d'un continent.

Un modèle simulant les processus géochimiques des sols a servi pour évaluer différents indicateurs chimiques des sols en régime permanent. Pour ce faire, il fut cependant nécessaire de

créer une base de données mondiale des paramètres de sols. Les résultats ont montrés que le pH surlignait les zones les plus sensibles attendues et démontrait le moins de variation suite à l'incertitude des paramètres de sols.

Un modèle a été créé afin d'évaluer le pH des lacs à travers le monde. Le modèle considère que les lacs sont représentés par une série de réacteurs parfaitement mélangés (CSTR). Il considère les entrées d'ions H^+ provenant de l'atmosphère, des sols environnants ainsi que de l'eau en amont des lacs. Il considère également les sorties d'ions H^+ suite au transport en aval des lacs et à l'évaporation.

Les facteurs d'effet terrestre et aquatique ont été générés à partir de modèles de régressions de différents écosystèmes à travers le monde liant le pH à la perte de biodiversité des plantes vasculaires, pour l'acidification terrestre, ou des poissons, pour l'acidification aquatique.

Ces développements méthodologiques ont donné comme résultat 13104 FCs pour, respectivement, l'acidification terrestre et aquatique. Chaque FC peut déterminer l'impact potentiel d'une émission ayant lieu dans un grillage d'une résolution équivalente à $2^\circ \times 2.5^\circ$ partout sur la planète. Des variations de 5 à 6 ordres de grandeurs et de 8 à 10 ordres de grandeurs pour respectivement l'acidification terrestre et aquatique ont été observées selon le lieu d'émission. L'incertitude des FCs dommages a été évaluée à plus d'un ordre de grandeurs (facteur ≈ 32) et à près de 2 ordres de grandeurs pour l'acidification terrestre et aquatique, respectivement.

De plus, les résultats ont montré l'importance de considérer la déposition transcontinentale. En effet, bien que cette dernière représente près de 4% de la déposition totale, elle est responsable de typiquement 15-17% et 44-58% de l'impact potentiel total de, respectivement, l'acidification terrestre et aquatique pour un lieu d'émission donné.

En évaluant la contribution des facteurs de devenir atmosphérique, de la sensibilité des sols ou du devenir dans les milieux récepteurs et des effets à la variabilité spatiale et à l'incertitude du facteur de dommage, il a été possible de conclure que les FCs de type problème doivent incorporer à la fois le devenir atmosphérique et la sensibilité des sols ou, respectivement, le devenir des milieux récepteurs. En effet, le facteur de devenir atmosphérique contribue peu à la variabilité spatiale alors que le facteur d'effet contribue à typiquement plus de 90% de l'incertitude totale. On en conclut qu'un FC portant sur la sensibilité des sols ou, respectivement,

du devenir des milieux récepteurs s'avère être le meilleur compromis entre la minimisation de l'incertitude et la maximisation de la pertinence environnementale et ce, tout en garantissant un lien cohérent entre les FCs problèmes et dommages. L'incertitude des FCs problèmes a été évaluée à un facteur 3 et un facteur 2 pour l'acidification terrestre et aquatique, respectivement.

De plus, il a été montré qu'une évaluation basée sur de la modélisation à une l'échelle nationale, continentale ou mondiale engendrait une incertitude supplémentaire équivalente à un ou deux ordres de grandeurs selon la résolution sélectionnée.

Ainsi, cette thèse a proposé un modèle de caractérisation régionalisé à l'échelle mondiale permettant la génération de FCs pouvant différentier davantage (comparativement aux FCs existants) les émissions de substances acidifiantes tout en montrant l'importance i) des impacts potentiels provenant de la déposition transcontinentale, ii) de la variabilité spatiale et iii) de l'incertitude et ce, pour l'acidification terrestre et aquatique. En ce sens, cette thèse permet d'améliorer les pratiques courantes de l'évaluation des impacts du cycle de vie de la catégorie d'impact acidification en ACV.

ABSTRACT

Terrestrial and aquatic acidification are mostly caused by atmospheric emissions of SO₂, NO_x and NH₃. Once emitted, these pollutants are transported over long distances, react with the atmospheric components before being deposited on receiving environments. Consequently, changes in their acidity levels may then be observed. For nearly every living species, there is an optimum pH. A serious deviation from this optimum can cause damages for this species and may thus result in a change of the ecosystem biodiversity.

Life cycle assessment (LCA) is a decision making tool that allows for the evaluation of potential impacts of a product over numerous impact categories (e.g. climate change, toxicity, acidification). To do so, life cycle impact assessment methods (LCIA) use characterization factors (CFs). A CF is defined as a mathematical representation of the cause-effect chain of a given impact category. Considering the impact assessment framework for atmospheric emitted pollutants (Udo de Haes et al., 2002), acidification's CFs were generated from the multiplication and subsequent sum of an atmospheric fate factor associated to a source location, a soil sensitivity or receiving environment fate factor related to receiving environments (terrestrial or aquatic, respectively) and effect factor also related to receiving environments. The atmospheric fate factor evaluates the source-receptor relationship. The sum of these factors represents to total fraction of the emission transferred to the receiving environments. The soil sensitivity or receiving environment fate factor evaluates the stability (measured, for example, with pH) of the receiving environment(s) following acid deposits. The effect factor evaluates the change in biodiversity loss caused by the recorded (or not) change in ecosystem quality.

These factors are calculated from numerous mathematical models based on natural sciences and describe the cause-effect chain succession of chemical, physical and biological processes. There are two approaches to calculating CFs: a midpoint and an endpoint approach. Endpoint CFs model the entire cause-effect chain. The midpoint CFs only model a part of the cause-effect chain; linking for example, emission to atmospheric deposition or to changes in ecosystem quality. In theory, however, midpoint CFs are defined as the trade-off between the maximisation of environmental relevance and the minimisation of the characterization model uncertainties.

Many limitations of the existing LCIA methods were identified. (i) Most CFs are based on continental modeling and evaluated with a midpoint approach. However, current CFs are only representative of a specific geographical context (i.e. Canada, United States of America, Europe or Japan). When characterizing life cycle emissions, it is assumed implicitly that they all occur within this geographical location (i.e. 1 kg of emitted SO₂ in China is equivalent to 1 kg of emitted SO₂ in Europe). With the globalization of markets, this represents an erroneous assumption. (ii) Continental scale modeling is problematic since emissions travelling in or from the considered continent are not considered. Even though transboundary deposition represent, in all likelihood, a small fraction of the total emissions, it is possible that acid deposits reach sensitive receiving environments and thus cause important potential impacts. (iii) There is also a lack of coherence between existing midpoint and endpoint terrestrial acidification CFs. Indeed, most midpoint CFs are based on a critical load approach, which, for the time being cannot be linked to a subsequent biodiversity loss modeling step. (iv) Spatially differentiated aquatic acidification CFs based on atmospheric fate, receiving environment fate and effect are non-existent. Consequently, the potential impacts of acidifying emissions on aquatic environments are currently ignored by LCA case studies. (v) The terrestrial acidification CFs highest resolution is the country level while it is inexistent for aquatic acidification. (vi) While CFs spatial variability is typically evaluated, the CFs inherent uncertainty remains unevaluated.

Consequently, the objectives of this project were defined:

1. Create a global scale characterization model for terrestrial and aquatic acidification based on sophisticated environmental models of atmospheric fate, soil sensitivity or receiving environment fate and effects.
2. Generate global scale fate factors enabling transboundary deposition evaluation.
3. Generate terrestrial sensitivity factors compatible with a subsequent biodiversity loss assessment.
4. Develop a model to assess aquatic acidification receiving environment fate which can be combined with existing biodiversity loss dose-response curves.
5. Generate terrestrial and aquatic regionalised endpoint CFs at a global scale.

6. Evaluate the generated CFs spatial variability and the uncertainty to define and generate worldwide regionalised midpoint CFs and support the interpretation of impact assessment results in LCA case studies.

To do so, we created a methodological framework i) specifying the required indicators to evaluate the entire cause-effect chain of terrestrial and aquatic acidification at a global scale and ii) listing the required modeling steps to obtain regional atmospheric fate factors, terrestrial sensitivity factors (linking an atmospheric deposition to a change in soil pH), receiving environment fate factors (linking an atmospheric deposition to a change in lake(s) pH) and effect factors (terrestrial and aquatic) to calculate changes in biodiversity loss according to a change in the receiving environment pH. Every development aimed to calculate regionalised endpoint CFs at a global scale and to evaluate both spatial variability and uncertainty.

A global scale atmospheric chemistry model was selected to serve as a basis for the generation of atmospheric fate factors. With iterative mass balance calculations, we were able to generate source-receptor matrices whose elements are atmospheric fate factors. The results showed that transboundary deposition typically represented 4% of a continent total deposition.

A model simulating soil geochemical processes served as a basis to evaluate steady-state soil chemical indicators. To do so, however, we needed to create a worldwide soil input parameter database. Results showed that pH highlighted expected sensitive areas and demonstrated less variations to soil input parameter uncertainty.

A model was created to evaluate worldwide lakes pH. This model considers lakes as a series of interconnected continuously stirred reactor tanks (CSTR). It considers the H^+ inputs from the atmosphere, from the surrounding soils and from upstream transport and considers the H^+ outputs from downstream transport and evaporation.

The terrestrial and aquatic effect factors were calculated from different model regressions, representing different ecosystems, linking pH to vascular plants (terrestrial acidification) or fishes (aquatic acidification) biodiversity loss.

These methodological developments resulted in 13104 CFs for both terrestrial and aquatic acidification. Each CF can assess the potential impacts of the acidifying emissions from any worldwide $2^\circ \times 2.5^\circ$ grid. CFs can vary, across emission grids, by 5 to 6 orders of magnitude and 8 to 10 orders of magnitude for terrestrial and aquatic acidification, respectively. The endpoint CFs

uncertainty was established to more than an order of magnitude (factor ≈ 32) and about 2 orders of magnitude for terrestrial and aquatic acidification, respectively.

Results also showed the importance of considering transboundary deposition. Indeed, while transboundary deposition only represented a share of 4% of a continent total deposition, the potential impacts of transboundary deposition represented, for an emission location, a share typically equal to 15-17% and 44-58% of the terrestrial and aquatic acidification total potential impacts, respectively.

By analysing the contributions of the atmospheric fate, soil sensitivity or the receiving environment fate and effects factors to the endpoint CFs spatial variability and uncertainty, we defined midpoint CFs. These midpoint CFs consider the evaluation of both atmospheric fate and soil sensitivity or receiving environment fate for terrestrial and aquatic acidification, respectively. Indeed, the atmospheric fate factor did little to explain the endpoint CFs spatial variability and effect factors typically contributed to more than 90% of the total uncertainty. We thus concluded that a CF based on soil sensitivity or receiving environment fate represented the best trade-off between maximising environmental relevance and minimising uncertainty. These midpoint CFs also ensure a consistent link to endpoint CFs. The midpoint uncertainty was approximated by a factor 3 and a factor 2 for terrestrial and aquatic acidification, respectively.

Furthermore, it was shown that an evaluation based on worldwide, continental or country resolutions CFs created an additional uncertainty equivalent to one or two orders of magnitude depending on the chosen resolution.

Conclusively, this thesis presented a worldwide regionalised characterization model which generated CFs capable of greater (comparatively to existing CFs) acidifying emissions differentiation while showing the importance of i) the potential impacts from transboundary deposition, ii) spatial variability and iii) uncertainty for both terrestrial and aquatic acidification. Consequently, this thesis improves the LCIA current practices when assessing the potential impacts related to the acidification impact category.

TABLE DES MATIÈRES

DÉDICACE.....	III
REMERCIEMENTS	V
RÉSUMÉ.....	VI
ABSTRACT	XI
TABLE DES MATIÈRES	XV
LISTE DES TABLEAUX.....	XX
LISTE DES FIGURES.....	XXII
LISTE DES SIGLES ET ABRÉVIATIONS	XXV
LISTE DES ANNEXES.....	XXVII
INTRODUCTION.....	1
CHAPITRE 1 REVUE DE LITTÉRATURE	3
1.1 L'acidification	3
1.2 Analyse du cycle de vie (ACV) et évaluation des impacts du cycle de vie (ACVI).....	7
1.2.1 L'évaluation des impacts du cycle de vie (ACVI) : l'importance des facteurs de caractérisations régionalisés.....	10
1.2.2 Modélisation environnementale de la catégorie d'impact « acidification » en ACVI	13
1.2.3 Acidification aquatique	28
1.2.4 Traitement de l'incertitude en ACVI	31
CHAPITRE 2 PRÉSENTATION GÉNÉRALE DES TRAVAUX.....	33
2.1 Hypothèse de recherche et objectifs.....	33
2.1.1 Question et hypothèse de recherche	33

2.1.2	Objectifs	34
2.2	Méthodologie générale.....	35
2.3	Présentation des manuscrits	36
CHAPITRE 3 DÉVELOPPEMENT DE CADRES MÉTHODOLOGIQUES POUR L'ÉVALUATION DES IMPACTS POTENTIELS DE L'ACIDIFICATION TERRESTRE ET AQUATIQUE		37
3.1	Acidification terrestre.....	37
3.2	Acidification aquatique	39
3.3	Évaluer l'apport et/ou les limites des FCs générés à l'aide d'une étude de cas ACV ...	41
CHAPITRE 4 DÉVELOPPEMENT DE FACTEURS DE DEVENIR ATMOSPHERIQUE RÉGIONAUX À L'ÉCHELLE MONDIALE		42
4.1	Sélection d'un modèle atmosphérique global	42
4.2	Présentation du premier manuscrit.....	45
4.3	“Spatially-differentiated atmospheric source-receptor relationships for nitrogen oxides, sulfur oxides and ammonia emissions at the global scale for life cycle impact assessment”	45
4.3.1	Abstract	45
4.3.2	Introduction	46
4.3.3	Method	48
4.3.4	Results	54
4.3.5	Discussion	56
4.3.6	Conclusion.....	60
CHAPITRE 5 DÉVELOPPEMENT DE FACTEURS DE SENSIBILITÉ DES MILIEUX TERRESTRES RÉGIONALISÉS À L'ÉCHELLE MONDIALE.....		62
5.1	Présentation du second manuscrit et lien avec le premier manuscrit.....	62
5.2	“Life cycle impact assessment of terrestrial acidification : modeling spatially explicit soil sensitivity at the global scale”	62

5.2.1	Abstract	62
5.2.2	Introduction	63
5.2.3	Method	66
5.2.4	Results	69
5.2.5	Discussion	72
5.2.6	Perspectives	77
CHAPITRE 6 DÉVELOPPEMENT DE FACTEURS DE CARACTÉRISATION RÉGIONALISÉS, PROBLÈMES ET DOMMAGES, À L'ÉCHELLE PLANÉTAIRE POUR L'ACIDIFICATION TERRESTRE.....		79
6.1	Lien avec les deux premiers manuscrits.....	79
6.2	“Uncertainty and spatial variability in characterization factors for terrestrial acidification at the global scale”	80
6.2.1	Abstract	80
6.2.2	Introduction	80
6.2.3	Method	82
6.2.4	Results	87
6.2.5	Discussion	90
6.2.6	Perspectives	94
6.3	Other comparisons of terrestrial acidification CFs	94
CHAPITRE 7 DÉVELOPPEMENT DE FACTEURS DE CARACTÉRISATION RÉGIONALISÉS, PROBLÈMES ET DOMMAGES, À L'ÉCHELLE PLANÉTAIRE POUR L'ACIDIFICATION AQUATIQUE.....		96
7.1	Présentation du quatrième manuscrit	96
7.2	Chaine de cause à effet pour l'acidification aquatique	97
7.3	“Uncertainty and spatial variability in characterization factors for aquatic acidification at the global scale”	97

7.3.1	Abstract	97
7.3.2	Introduction	98
7.3.3	Method	99
7.3.4	Results	103
7.3.5	Discussion	106
7.3.6	Conclusion.....	108
7.4	Résultats complémentaires	109
7.4.1	Significance of transboundary transport	109
7.4.2	Region-specific characterization factors	110
CHAPITRE 8 DISCUSSION GÉNÉRALE : ÉVALUATION DES RETOMBÉS DE L'APPLICATION DES FACTEURS DE CARACTÉRISATION RÉGIONALISÉS À L'ÉCHELLE PLANÉTAIRE DANS UNE ANALYSE DE CYCLE DE VIE		111
8.1	Mise en contexte.....	111
8.2	Méthode.....	111
8.2.1	Définition des objectifs et du champ d'étude.....	111
8.2.2	Analyse de l'inventaire.....	112
8.2.3	Évaluation des impacts du cycle de vie.....	113
8.2.4	Interprétation	113
8.3	Résultats	114
8.3.1	Analyse de l'inventaire.....	114
8.3.2	Évaluation des impacts du cycle de vie.....	114
8.3.3	Interprétation	117
8.4	Conclusions de l'application des facteurs de caractérisation dans une analyse du cycle de vie	123
CONCLUSION		124

Contributions scientifiques.....	124
Contributions pratiques	125
Perspectives et recommandations.....	126
BIBLIOGRAPHIE	129
ANNEXES	138

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 1.1: Détails des FCs de type problème disponibles pour l'acidification terrestre	16
Tableau 1.2: Détails des FCs de type dommage disponibles pour l'acidification terrestre	17
Tableau 1.3: Valeur critique des indicateurs chimiques pour le calcul du facteur $ANC_{le,crit}$ (Posch, de Smet, Hetteling, & Downing, 1999).....	21
Tableau 1.4: Classe de sensibilité des charges critiques à l'échelle globale	22
Tableau 1.5: Fonction d'effet liée à la charge critique.....	26
Tableau 1.6: Fonction d'effet liée à la modélisation dynamique	28
Tableau 1.7: Détails des facteurs de caractérisation disponibles pour l'acidification aquatique ...	29
Tableau 4.1: Score d'évaluation (%) pour chacun des modèles restant à travers le monde	44
Tableau 4.2: Résolution spatiale des modèles.....	45
Tableau 4.3: Fate factors from the simplified SRMs developed as part of this study compared to the SRMs from the two GEOS-Chem simulations in which the Canadian emission inventory was first included and then excluded. Values in parentheses represent a $\pm 50\%$ variation range. The fate factor represents the fraction of a deposition in region j (e.g. Canada, rest of North America, South America, Europe, etc.) due to an emission in region i (Canada, in this case)*	57
Tableau 4.4: NO_x fate factors from SRMs in this study compared to the fate factors from an average over fifteen global scale models in Sanderson et al. (2008). Values in parentheses represent the fate factor variability range. The range was calculated with the standard deviation of the fifteen atmospheric models in Sanderson et al. with a normal distribution. Our SRMs were re-calculated to match the regions in Sanderson et al.*	58
Tableau 5.1: PROFILE* parameters	68
Tableau 5.2: Statistical data on SF-based indicators (BC/Al [ha keq-1 ha yr], Al/Ca [ha keq-1 ha yr], pH [mol H^+ L ⁻¹ ha keq-1 ha yr] and Al [μ mol Al L ⁻¹ ha keq-1 ha yr] as a function of pollutants and soil chemical indicators	70

Tableau 5.3: Fraction (sum equal to 1) of the receiving environments in the different relative error brackets. Relative errors were evaluated between simulated and ISRIC-Wise pH. The measured pH spatial variation within an ISRIC-Wise soil unit is $\pm 25\%$. Previously released PROFILE studies were used in the underlined biomes.....	75
Tableau 6.1: Regression analysis of the spatial variability between endpoint characterization factors (i.e. $\sum FF \times SF \times EF$) with both atmospheric fate ($\sum FF$) and atmospheric fate-soil sensitivity ($\sum FF \times SF$) per emitted pollutants.....	89
Tableau 6.2: Comparison of available biodiversity losses endpoint CFs	93
Tableau 7.1: Regression analysis of the spatial variability between endpoint characterization factors (i.e. $\sum FF \times RF \times EF$) with both atmospheric fate ($\sum FF$) and atmospheric fate-receiving environment fate ($\sum FF \times RF$) per emitted pollutants.....	105
Tableau 7.2: Comparison of the contribution to the total impact score when 1 kg of each substance are emitted	108

LISTE DES FIGURES

Figure 1-1: Schéma illustrant les étapes de l'acidification des sols et des milieux aquatiques (Pidwirny, 2006).....	4
Figure 1-2: Exemples de réactions chimiques survenant dans l'atmosphère, adaptée de (Rana, 2006).....	5
Figure 1-3: Exemples de réactions chimiques survenant dans les milieux terrestres et possiblement aquatiques (DeVries & Breeuwsma, 1987).....	6
Figure 1-4: Étapes constitutives de l'ACV, adaptée de (ISO, 2006).....	8
Figure 1-5: Catégories d'impacts de la méthode Impact 2002+, adaptée de (Humbert et al., 2004)	9
Figure 1-6: Différence entre facteurs de caractérisation problèmes et dommages (van Zelm, 2010)	10
Figure 1-7: Définition théorique du facteur de caractérisation problèmes (« midpoint » et dommages (« endpoint ») en fonction de la pertinence environnementale et de l'incertitude, adapté de (Margni & Lessage, 2009)	11
Figure 1-8: Variations des FCs acidification terrestre pour une émission de SO ₂ en Europe : facteur européen générique (rouge, 1er à gauche) et par pays européen (bleu, 2e et suivants) avec la méthode EDIP 2003 (Hauschild & Potting, 2003). Le FC représente l'aire [m ²] des écosystèmes dont la déposition dépasse la charge critique par gramme [g] de substances acidifiantes émises.....	12
Figure 1-9: Chaîne cause-effet de l'acidification terrestre, adaptée de (Bare et al., 2002).....	14
Figure 1-10: Illustration du concept de calcul d'une fonction charge critique.	20
Figure 3-1: Étapes nécessaires afin de générer des FCs de types problème et dommage pour l'acidification terrestre. (Zone pointillée : travail réalisé en collaboration).....	38
Figure 3-2: Étapes nécessaires afin de générer des FCs de types problème et dommage pour l'acidification aquatique.	40
Figure 4-1: Representation of the methodological approach to derive SRMs	50

- Figure 4-2: SRMs of nitrogen oxides (NO_x , HNO_3) emission in Paris (top), sulfur oxides (SO_2 , SO_4) emission in Beijing (middle) and ammonia (NH_3) emission in New York (bottom)....55
- Figure 5-1: Worldwide SFs due to S from SO_2 - SO_4 emissions-related deposition based on the (A) BC/Al, (B) Al/Ca, (C) pH and (D) Al soil chemical indicators71
- Figure 5-2: Cumulative distribution plot of sensitivity factors' (SFs) Monte Carlo input parameter variability evaluation. Results are expressed as a distribution of ratios between scenarios with varied input parameters divided by scenarios with original (best estimate) parameters in log scale.....72
- Figure 6-1: Boxplot of spatially differentiated characterization factors at $2^\circ \times 2.5^\circ$ grid resolution for NO_x , NH_3 and SO_2 . The edge of the box represents the 25th-75th percentiles, the line in the box represents the median and the whiskers represent the minimum and maximum of the distribution.87
- Figure 6-2: Percentage of potential impact per pollutant occurring outside the continental scale (X-axis) for the cumulative distribution of continental $2^\circ \times 2.5^\circ$ grids (Y-axis).....88
- Figure 6-3: log 10 of the ratio between the Monte Carlo varied and original $\sum \text{FF}$, $\sum \text{FF} \times \text{SF}$ and CF (X-axis) for the cumulative distribution of $2^\circ \times 2.5^\circ$ grids (Y-axis) for emissions of NO_x , NH_3 and SO_289
- Figure 6-4: Cumulative distribution of the log 10 of the ratio between the $2^\circ \times 2.5^\circ$ CFs found within the global, continental or country level resolution and the global, continental or country level resolution CFs (X-axis) for emissions of a) NO_x , b) NH_3 and c) SO_290
- Figure 6-5: Comparison of the contributions of NO_x , NH_3 and SO_2 to the impact score when 1 kg of each substance is emitted with existing CFs. (FF = Atmospheric fate factors, SF = Receiving environment sensitivity factors).....95
- Figure 7-1 : Développement d'une chaîne de cause à effet pour l'acidification aquatique97
- Figure 7-2: Worldwide spatially differentiated endpoint characterization factors for aquatic acidification at $2^\circ \times 2.5^\circ$ grid resolution for emissions of A) NO_x , B) NH_3 and C) SO_2 . D) Box plot showing the distribution of the calculated 13104 CFs. The edge of the box represents the 25th -75th percentiles, the line in the box represents the median and the whiskers represent the minimum and maximum of the distribution104

Figure 7-3: log 10 of the ratio between the Monte Carlo varied and original $\sum FF$, $\sum FF \times SF$ and CF (X-axis) for the cumulative distribution of $2^\circ \times 2.5^\circ$ grids (Y-axis) for emissions of NO_x , NH_3 and SO_2	105
Figure 7-4: Percentage of transcontinental potential impacts of (a) NO_x , (b) NH_3 and (c) SO_2 continental emissions	109
Figure 7-5: Cumulative distribution of the log 10 of the ratio between the $2^\circ \times 2.5^\circ$ CFs found within the global, continental or country level resolution and the global, continental or country level resolution CFs (X-axis) for emissions of a) NO_x , b) NH_3 and c) SO_2	110
Figure 8-1: Frontière du système étudié (les flèches représentent des phases de transport).....	112
Figure 8-2: Évaluation des impacts selon les FCs développés pour l'acidification terrestre et implémentés dans la méthodologie IMPACT World + pour le scénario de base.	115
Figure 8-3: Évaluation des impacts selon les FCs développés pour l'acidification terrestre et implémentés dans la méthodologie IMPACT World + pour le scénario « réaliste ».....	117
Figure 8-4: Comparaison de l'évaluation des impacts de l'acidification terrestre par différentes méthodes ACVI pour le scénario de base.	119
Figure 8-5: Comparaison de l'évaluation des impacts de l'acidification terrestre par différentes méthodes ACVI pour le scénario « réaliste ».....	120
Figure 8-6: Intégration de l'incertitude dans l'évaluation des impacts de l'acidification terrestre pour le scénario de base.	121
Figure 8-7: Intégration de l'incertitude dans l'évaluation des impacts de l'acidification terrestre pour le scénario « réaliste ».....	121
Figure 8-8: Intégration de l'incertitude dans l'évaluation des impacts de l'acidification aquatique pour le scénario de base.	122
Figure 8-9: Intégration de l'incertitude dans l'évaluation des impacts de l'acidification aquatique pour le scénario de réaliste.	122

LISTE DES SIGLES ET ABRÉVIATIONS

La liste des sigles et abréviations en ordre alphabétique :

ACV	Analyse du cycle de vie
ACVI	Évaluation des impacts du cycle de vie
Al	Aluminium
ANC	capacité à neutraliser les acides (acid neutreulizing capicity)
BC	Cations de base (base cations; Ca^{2+} , K^{+} , Mg^{2+})
BS	Saturation de base (base saturation)
Ca^{2+}	Calcium
CEC	Capacité d'échange cationique
CF	Characterisation factor
Cl^{-}	Chlore
CL	Charge critique (critical load)
EF	Facteur d'effet (effect factor)
FC	Facteur de caractérisation
FF	Facteur du devenir atmosphérique (fate factor)
HNO_3	Acide nitrique
K^{+}	Potassium
LCA	life cycle assessment
LCIA	life cycle impact assessment
Na	Sodium
NH_3	Ammoniac
NO_x	Oxydes d'azote
NPP	production primaire nette (net primary production)
Mg^{2+}	Magnésium
PDF	Potentially down fraction of species
PNOF	Potentially non-occurring fraction of species

RF	Facteur de devenir des milieux récepteurs (receiving environment fate)
SRM	Source receptor matrix
SO ₂	Dioxyde de soufre (sulphur dioxide)
SO ₄ ²⁻	Sulphate
SF	Facteur de la sensibilité du milieu récepteur terrestre (sensitivity factor)

LISTE DES ANNEXES

Annexe 1 : Modèles atmosphérique considérés

Annexe 2 : Supplementary data associé au manuscrit 1 (Chapitre 4)

Annexe 3 : Supporting information associé au manuscrit 2 (Chapitre 5)

Annexe 4 : Supporting information associé au Chapitre 6

Annexe 5 : Electronic supplement associé au manuscrit 3 (Chapitre 7)

Annexe 6 : Résultats complémentaires du Chapitre 8

INTRODUCTION

L'analyse du cycle de vie (ACV) est utilisée afin de caractériser les impacts potentiels associés à un produit, un service ou un procédé sur l'environnement. Ces impacts peuvent être classifiés sous diverses catégories, dont l'acidification. L'impact de l'acidification est calculé en utilisant des facteurs de caractérisation (FCs); une représentation mathématique de la chaîne cause à effet. Ces FCs sont calculés à l'aide de multiples modèles environnementaux qui permettent de quantifier le devenir atmosphérique (FF), la sensibilité des écosystèmes récepteurs (SF) ou le devenir des milieux récepteurs (RF) ainsi que les effets (EF) suite à l'émission de substances acidifiantes.

Les FCs de la catégorie d'impact acidification sont basés sur de la modélisation des conditions (e.g. direction du vent, précipitation, topographie) du lieu d'émission et des milieux récepteurs environnants à une échelle continentale. Par conséquent, ces FCs ne sont représentatifs que d'un lieu géographique circonscrit. Cependant, les émissions qui ont lieu tout au long du cycle de vie d'un produit, service ou procédé peuvent provenir de multiples régions géographiques (e.g. Chine, États-Unis, Europe). Dans un tel contexte, et en l'absence de FCs à l'échelle mondiale, les praticiens émettent alors, implicitement, l'hypothèse que toutes les émissions sont localisées dans le lieu géographique représentatif des FCs. Ainsi, lors de l'emploi de FCs européens, par exemple, l'impact lié à l'émission de 1 kg de SO₂ en Chine est alors considéré comme équivalent à l'impact résultant de l'émission de 1 kg SO₂ en Europe. Sachant que les impacts varient en fonction du lieu d'émission et des milieux récepteurs environnants, cette hypothèse s'avère donc erronée dans le cadre d'une économie mondiale où il existe de nombreux échanges intercontinentaux. De plus, contrairement à l'idéologie ACV, les impacts potentiels des polluants transportés hors du cadre d'analyse (i.e., sur un autre continent) ne sont pas pris en compte. Ces faits militent en faveur du développement d'une méthode d'évaluation des impacts à une échelle globale.

Dans ce contexte, le premier chapitre de la thèse présente la revue de littérature qui a permis d'aboutir à l'hypothèse de recherche. Le second chapitre s'attarde sur l'hypothèse de recherche, les objectifs visés ainsi que la méthodologie générale. Le chapitre 3 présente les modèles de caractérisation développés qui ont servi à évaluer les impacts potentiels de l'acidification terrestre et aquatique. Les chapitres 4, 5, et 7 présentent les trois manuscrits issus de cette thèse ayant pour

objectifs les développements méthodologiques d'une méthode de caractérisation régionalisée des émissions acidifiantes à l'échelle globale. Le chapitre 4 vise à prédire les facteurs de devenir atmosphérique (lien entre l'émission et la déposition). Le chapitre 5 vise le développement de facteur de sensibilité terrestre (lien entre la déposition et un changement de la qualité du sol). Dans le chapitre 6, les facteurs de devenir atmosphérique, de la sensibilité et d'effet (développés en collaboration) sont combinés afin d'évaluer l'incertitude et la variabilité spatiale associée aux FCs terrestre obtenus. Le chapitre 7 présente le développement des FCs de l'acidification aquatique ainsi que leur incertitude et variabilité spatiale associées. Le chapitre 8 présente un exemple d'application ACV visant à montrer les avantages et inconvénients des nouveaux FCs. Le tout est suivi par une discussion sur les contributions de cette thèse, les conclusions et recommandations pour des projets travaux de recherche ultérieurs.

.

CHAPITRE 1 REVUE DE LITTÉRATURE

Ce chapitre a pour but d'exposer et critiquer les différentes définitions, éléments et concepts nécessaires à la compréhension de la présente thèse. Cette revue de littérature débute par la présentation du phénomène de l'acidification (section 1.1) qui sera suivie de la description de ce qu'est l'analyse du cycle de vie (section 1.2), de l'évaluation des impacts de l'acidification dans le cadre de l'analyse des impacts du cycle de vie (section 1.2.1), des limites de la modélisation actuelle des impacts reliés à l'acidification terrestre (section 1.2.2) et aquatique (section 1.2.3) en analyse du cycle de vie et finalement du traitement de l'incertitude en analyse du cycle de vie (section 1.2.4).

1.1 L'acidification

Un acide est une substance qui a la faculté de libérer des ions hydrogène (H^+). La mesure de l'acidité d'une solution est définie par la valeur de son pH ($pH = -\log [H^+]$). Une substance possédant un pH inférieur à 7 est considérée comme étant acide. Lorsque le pH est supérieur à 7, la substance est considérée comme étant basique (Tournier & Servant, 1983).

L'acidification peut se définir comme étant le processus pendant lequel une augmentation de la concentration en H^+ est observée (Udo de Haes et al., 2002). L'apport anthropogénique en ions H^+ joue un rôle prépondérant dans le cadre des dommages aux écosystèmes, à la santé humaine ainsi qu'aux matériaux et aux cultures (UNECE, 1999).

Parmi les substances acidifiantes de nature anthropogénique, il y a le dioxyde de soufre (SO_2), l'ammoniac (NH_3) et les oxydes d'azote ($NO_x = NO, NO_2, HNO_3, HNO_4, NO_3, 2xN_2O_5, PAN$ (peroxyacetyl nitrate, nitrates organique). Bien qu'il existe d'autres substances responsables de l'acidification (exemple : HCl, HF, H_2S , etc.), les émissions de SO_2 , de NO_x et de NH_3 représentent une large part de l'émission totale des substances acidifiantes (Hauschild & Potting, 2003). Les émissions de SO_2 et de NO_x anthropogéniques émanent particulièrement des industries productrices d'électricité (pétrole et charbon), de l'exploitation et de la fusion de métaux non-ferreux, de l'industrie pétrolière et gazière ainsi que du transport (Jeffries & Ouimet, 2004). En effet, tout processus incluant la combustion de combustible fossile émettra des SO_2 et de NO_x . Les émissions anthropogéniques de NH_3 proviennent, pour l'essentiel, de l'agriculture et des

déjections des animaux d'élevages desquelles s'évaporent le NH_3 (Portejoie, Martinez, & Landmann, 2002). La Figure 1-1 illustre le parcours des polluants acidifiant suite à leur émission.

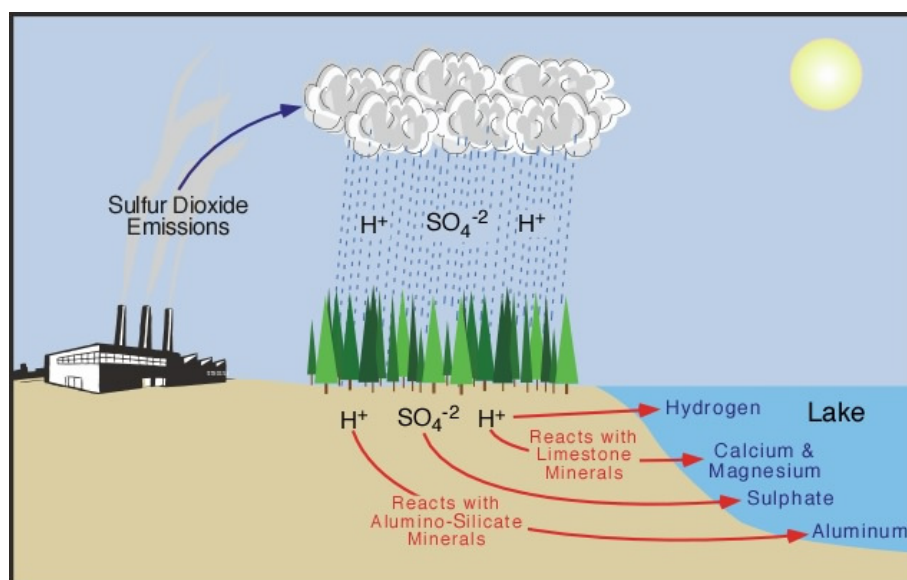
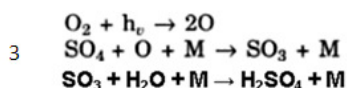
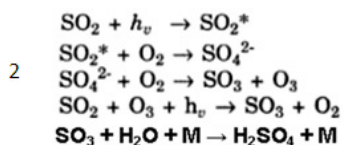
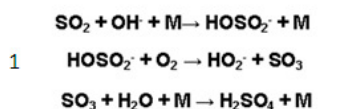


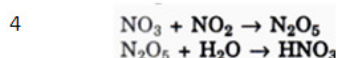
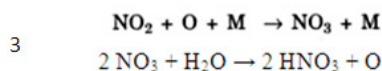
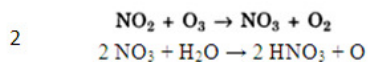
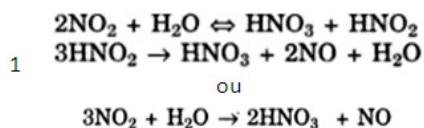
Figure 1-1: Schéma illustrant les étapes de l'acidification des sols et des milieux aquatiques (Pidwirny, 2006).

Une fois émises, les substances responsables sont dispersées et converties selon différentes réactions chimiques à l'atmosphère afin de former des acides (Udo de Haes et al., 2002). La Figure 1-2 présente différents exemples de réactions chimiques atmosphériques (Rana, 2006). La déposition subséquente peut se faire selon trois voies : humide (e.g. pluie, neige), sèche (déposition directe des particules et des gaz sur les milieux récepteurs) et la déposition de l'humidité des nuages (provenant des nuages et du brouillard qui se déposent sur les feuilles, le sol, etc.) (Bare, Norris, Pennington, & McKone, 2002; Norris, 2003). Le périmètre, où s'effectue la majorité de la déposition, a été évalué à quelques centaines jusqu'à des milliers de kilomètres à partir du point d'émission (Whelpdale, 1991).

Réactions possibles avec SO_2



Réactions possibles avec NO_x



Réactions possibles avec NH_3

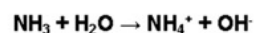


Figure 1-2: Exemples de réactions chimiques survenant dans l'atmosphère, adaptée de (Rana, 2006)

M = une espèce chimique non-spécifiée présente pour disperser (« carry off ») l'excès d'énergie de la réaction.

Une fois déposée, ces substances réagissent avec les éléments du milieu récepteur (terrestre ou aquatique). La Figure 1-3 présente certaines réactions ayant lieu dans les milieux terrestres et, possiblement, aquatiques. Selon ces réactions, les substances acides peuvent évacuer, par lessivage (« weathering »), les minéraux tampons : calcium (Ca^{2+}), magnésium (Mg^{2+}), potassium (K^+) et sodium (Na^+). Cette perte d'éléments se répercute sur la santé et la croissance de la biota puisque ces minéraux sont également (à l'exception du sodium) des éléments nutritifs (Connolly, Cain, Vestal, & Edwards, 2009) et a également pour conséquence d'épuiser la capacité tampon des milieux récepteurs face aux futures dépositions acides. Si la capacité tampon du milieu récepteur demeure élevée, il est fort probable qu'aucun changement des paramètres physico-chimiques (e.g. pH) ne soit observé. Au contraire, si la capacité tampon est faible, il est fort probable que des changements soient observés.

Process from left to right	Reaction equation		Process from right to left	
The C cycle				
1 ^A Photosynthesis	$\text{CO}_2 + \text{H}_2\text{O}$	$\rightleftharpoons \text{CH}_2\text{O} + \text{O}_2$	respiration	1 ^B
2 ^A Dissociation of CO_2	$\text{CO}_2 + \text{H}_2\text{O}$	$\rightleftharpoons \text{HCO}_3^- + \text{H}^+$	protonation of HCO_3^-	2 ^B
3 Formation of formic acid	$2\text{CH}_2\text{O} + \text{O}_2$	$\rightarrow 2\text{HCOO}^- + 2\text{H}^+$		
4 Oxidation of formic acid	$2\text{HCOO}^- + \text{O}_2 + 2\text{H}^+$	$\rightarrow 2\text{CO}_2 + 2\text{H}_2\text{O}$		
5 ^A Dissociation of organic acids	RCOOH	$\rightleftharpoons \text{RCOO}^- + \text{H}^+$	protonation of organic anions	5 ^B
6 ^A Formation of an aluminium-organic complex	$3\text{RCOOH} + \text{Al(OH)}_3$	$\rightleftharpoons (\text{RCOO})_3\text{Al} + 3\text{H}_2\text{O}$	hydrolysis of an aluminium-organic complex	6 ^B
The N cycle				
7 Fixation of N_2	$4\text{ROH} + 2\text{N}_2 + 3\text{CH}_2\text{O}$	$\rightarrow 4\text{RNH}_2 + 3\text{CO}_2 + \text{H}_2\text{O}$		
8 ^A Ammonification	$\text{RNH}_2 + \text{H}_2\text{O} + \text{H}^+$	$\rightleftharpoons \text{ROH} + \text{NH}_4^+$	uptake of NH_4^+	8 ^B
9 ^A Volatilization of NH_3	NH_4^+	$\rightleftharpoons \text{NH}_3 + \text{H}^+$	formation of NH_4^+	9 ^B
10 Nitrification	$\text{NH}_4^+ + 2\text{O}_2$	$\rightarrow \text{NO}_3^- + 2\text{H}^+ + \text{H}_2\text{O}$		
11 Uptake of NO_3^-	$\text{ROH} + \text{NO}_3^- + \text{H}^+ + 2\text{CH}_2\text{O}$	$\rightarrow \text{RNH}_2 + 2\text{CO}_2 + 2\text{H}_2\text{O}$		
12 Denitrification	$5\text{CH}_2\text{O} + 4\text{NO}_3^- + 4\text{H}^+$	$\rightarrow 2\text{N}_2 + 5\text{CO}_2 + 7\text{H}_2\text{O}$		
13 Chemodenitrification	$\text{CH}_2\text{O} + 4\text{NO}_3^- + 4\text{H}^+$	$\rightarrow 4\text{NO}_2 + \text{CO}_2 + 3\text{H}_2\text{O}$		
14 Absorption of NH_3	$\text{ROH} + \text{NH}_3$	$\rightarrow \text{RNH}_2 + \text{H}_2\text{O}$		
15 Absorption of NO_2	$4\text{ROH} + 4\text{NO}_2 + 7\text{CH}_2\text{O}$	$\rightarrow 4\text{RNH}_2 + 7\text{CO}_2 + 5\text{H}_2\text{O}$		
16 Oxidation of NO_2	$4\text{NO}_2 + \text{O}_2 + 2\text{H}_2\text{O}$	$\rightarrow 4\text{NO}_3^- + 4\text{H}^+$		
The S cycle				
17 Uptake of SO_4^{2-}	$\text{ROH} + \text{SO}_4^{2-} + 2\text{H}^+ + 2\text{CH}_2\text{O}$	$\rightarrow \text{RSH} + 2\text{CO}_2 + 3\text{H}_2\text{O}$		
18 Mineralization of organic S	$\text{RSH} + \text{H}_2\text{O} + 2\text{O}_2$	$\rightarrow \text{ROH} + \text{SO}_4^{2-} + 2\text{H}^+$		
19 Sulphate reduction	$\text{SO}_4^{2-} + 2\text{H}^+ + 2\text{CH}_2\text{O}$	$\rightarrow \text{H}_2\text{S} + 2\text{CO}_2 + 2\text{H}_2\text{O}$		
20 Oxidation of H_2S	$\text{H}_2\text{S} + 2\text{O}_2$	$\rightarrow \text{SO}_4^{2-} + 2\text{H}^+$		
21 Reduction of Fe_2O_3 and SO_4^{2-}	$2\text{Fe}_2\text{O}_3 + 8\text{SO}_4^{2-} + 16\text{H}^+ + 15\text{CH}_2\text{O}$	$\rightarrow 4\text{FeS}_2 + 15\text{CO}_2 + 23\text{H}_2\text{O}$		
22 Oxidation of FeS_2	$4\text{FeS}_2 + 15\text{O}_2 + 8\text{H}_2\text{O}$	$\rightarrow 2\text{Fe}_2\text{O}_3 + 8\text{SO}_4^{2-} + 16\text{H}^+$		
23 Absorption of H_2S	$\text{H}_2\text{S} + \text{ROH}$	$\rightarrow \text{RSH} + \text{H}_2\text{O}$		
24 Oxidation of H_2S to SO_2	$2\text{H}_2\text{S} + 3\text{O}_2$	$\rightarrow 2\text{SO}_2 + 2\text{H}_2\text{O}$		
25 Absorption of SO_2	$2\text{SO}_2 + 2\text{ROH} + 3\text{CH}_2\text{O}$	$\rightarrow 2\text{RSH} + 3\text{CO}_2 + 3\text{H}_2\text{O}$		
26 Oxidation of SO_2	$2\text{SO}_2 + \text{O}_2 + 2\text{H}_2\text{O}$	$\rightarrow 2\text{SO}_4^{2-} + 4\text{H}^+$		
27 ^A Adsorption of SO_4^{2-}	$(\text{OH})_2\text{ex} + \text{SO}_4^{2-} + 2\text{H}^+$	$\rightleftharpoons \text{SO}_4\text{ex} + 2\text{H}_2\text{O}$	desorption of SO_4^{2-}	27 ^B
28 ^A Precipitation of SO_4^{2-}	$\text{Al(OH)}_3 + \text{SO}_4^{2-} + 2\text{H}^+$	$\rightleftharpoons \text{AlOHSO}_4 + 2\text{H}_2\text{O}$	dissolution of jurbanic	28 ^B
The cation cycle				
29 ^A Uptake of M^+	$\text{RCOOH} + \text{M}^+$	$\rightleftharpoons \text{RCOOM} + \text{H}^+$	Mineralization of M^+	29 ^B
30 ^A Reverse weathering of M^+	$2\text{M}^+ + \text{H}_2\text{O}$	$\rightleftharpoons \text{M}_2\text{O} + 2\text{H}^+$	Weathering	30 ^B
31 ^A Adsorption of M^+	$\text{M}^+ + \text{H}^+\text{ex}$	$\rightleftharpoons \text{M}^+\text{ex} + \text{H}^+$	Desorption of M^+	31 ^B
32 Weathering and uptake of M^+	$2\text{RCOOH} + \text{M}_2\text{O}$	$\rightarrow 2\text{RCOOM} + \text{H}_2\text{O}$		
33 Reduction of Fe_2O_3	$2\text{Fe}_2\text{O}_3 + \text{CH}_2\text{O} + 8\text{H}^+$	$\rightarrow 4\text{Fe}^{2+} + \text{CO}_2 + 5\text{H}_2\text{O}$		
34 Oxidation of Fe^{2+}	$4\text{Fe}^{2+} + \text{O}_2 + 4\text{H}_2\text{O}$	$\rightarrow 2\text{Fe}_2\text{O}_3 + 8\text{H}^+$		

Figure 1-3: Exemples de réactions chimiques survenant dans les milieux terrestres et possiblement aquatiques (DeVries & Breeuwsma, 1987)

$\text{M}^+ = \text{Cation } [\text{Al}^{3+}, \text{Fe}^{3+}, \text{Ca}^{2+}, \text{Mg}^{2+}, \text{Na}^+, \text{K}^+]$

Dans le cas de l'acidification des milieux aquatiques, l'apport du milieu terrestre s'avère important. En effet, les substances acidifiantes migrent dans le sol jusqu'à atteindre les eaux souterraines qui se déverseront, par la suite, dans les eaux de surface. En ce sens, plusieurs résultats de recherche montrent que ce sont les réserves de cations de base ($\text{BC} = \text{Ca}^{2+}, \text{K}^+, \text{Mg}^{2+}$) dans les sols des bassins versants qui déterminent l'acidification des eaux de surface (Jeffries & Ouimet, 2004).

Il existe de nombreuses conséquences suite à l'acidification du milieu terrestre : les effets directs et les effets indirects. Les effets directs sont liés au changement de pH des sols. Pour toute espèce vivante, il existe une valeur (ou une plage) de pH optimal. Une sérieuse déviation de cet optimum entraîne des conséquences négatives. Par conséquent, un changement de pH peut entraîner une perte de biodiversité (Goedkoop & Spriensma, 2001; Hayashi, Okazaki, Itsubo, & Inaba, 2004; van Zelm et al., 2007). Parmi les effets indirects du changement de pH l'on retrouve la libération d'ions aluminium pouvant atteindre une concentration toxique pour les végétaux (Santruckova, Santrucek, Setlik, Svoboda, & Kopacek, 2007), une déficience de la présence de magnésium, un excès de nutriments comme l'azote, une dissolution des métaux et la présence de composés organiques chimiques limitant la croissance (Hayashi et al., 2004). Parmi ces effets indirects, la toxicité à l'aluminium est identifiée comme étant le facteur principal des effets de l'acidification sur le milieu terrestre (Hayashi et al., 2004).

Dans le milieu aquatique, l'acidification cause une cascade d'effets qui inclue les effets directs de l'acidité, la contamination par les métaux toxiques, la perte de proies et la diminution de la valeur nutritionnelle de la vie aquatique (Jeffries & Ouimet, 2004). Par exemple, au Canada, la plupart des espèces d'invertébrés sensibles à l'acidité sont absentes des lacs dont le pH est inférieur à 6 (Jeffries & Ouimet, 2004).

1.2 Analyse du cycle de vie (ACV) et évaluation des impacts du cycle de vie (ACVI)

Le cycle de vie d'un produit, d'un service ou d'un procédé est constitué de différentes étapes :

- Extraction et traitement des matières premières,
- Processus de fabrication,
- Transport et distribution,
- Utilisation et réutilisation du produit fini,
- Recyclage ou la gestion des déchets en fin de vie.

L'Analyse du Cycle de Vie (ACV), quant à elle, se définit comme étant la : « compilation et l'évaluation des entrants et sortants, ainsi que des impacts potentiels environnementaux d'un système de produits au cours de son cycle de vie » (ISO, 2006). En ce sens, l'ACV est un outil

d'aide de prise à la décision permettant de quantifier les impacts environnementaux potentiels reliés au cycle de vie de produits, de services et/ou de procédés.

L'ACV se réalise en quatre phases : la définition des objectifs et du champ d'étude, l'analyse de l'inventaire, l'évaluation des impacts du cycle de vie ainsi que l'interprétation. L'ACV utilise une méthodologie itérative permettant l'interaction des quatre phases (Figure 1-4).

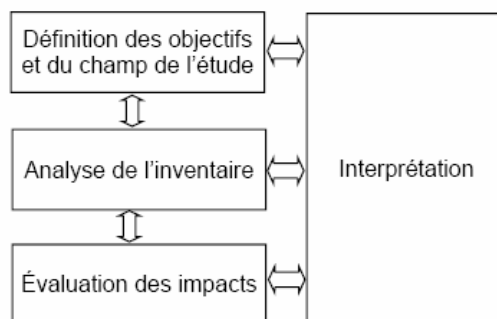


Figure 1-4: Étapes constitutives de l'ACV, adaptée de (ISO, 2006)

L'ACV est généralement utilisée sur une base comparative (e.g. deux produits). La phase de la définition des objectifs et du champ de l'étude établit la fonction et la base de comparaison (i.e., unité fonctionnelle) utilisée lors de l'étude. Elle explique également les différentes raisons pour lesquelles l'ACV est effectuée et présente le système de produits/services/procédés (frontières du système) étudié.

La seconde étape, l'analyse de l'inventaire, est consacrée au mode de calcul et au recueil des données nécessaires à l'accomplissement de l'ACV. Cette phase comprend une série d'étapes opérationnelles permettant d'obtenir des flux de matières, sous forme d'entrants et de sortants, reliés au cycle de vie des produits, services et/ou procédés. Deux types de flux sont définis lors de l'analyse de l'inventaire : les flux économiques et les flux élémentaires. Les flux économiques se définissent comme étant les intrants ou les sortants de la technosphère. Les flux élémentaires se définissent comme étant les intrants ou les sortants de l'écosphère.

La troisième étape consiste en l'évaluation des impacts du cycle de vie (ACVI). Cette dernière représente l'étape la plus importante de cette thèse. L'ACVI vise à comprendre et à analyser les impacts environnementaux potentiels du système de produits à l'aide d'une représentation quantifiable qui reflète les impacts environnementaux de l'ensemble des émissions ou de

l'utilisation des ressources. L'ACVI prend comme entrant, les données de la phase d'inventaire. Les substances émises et/ou extraites et leur quantité respectives sont, par la suite, associées à des catégories d'impacts telles que, par exemple, le réchauffement climatique, l'acidification ou la toxicité. La Figure 1-5 présente un exemple des catégories d'impacts retrouvées dans la méthode européenne d'évaluation des impacts IMPACT 2002+ (Humbert, Margni, & Jolliet, 2004).

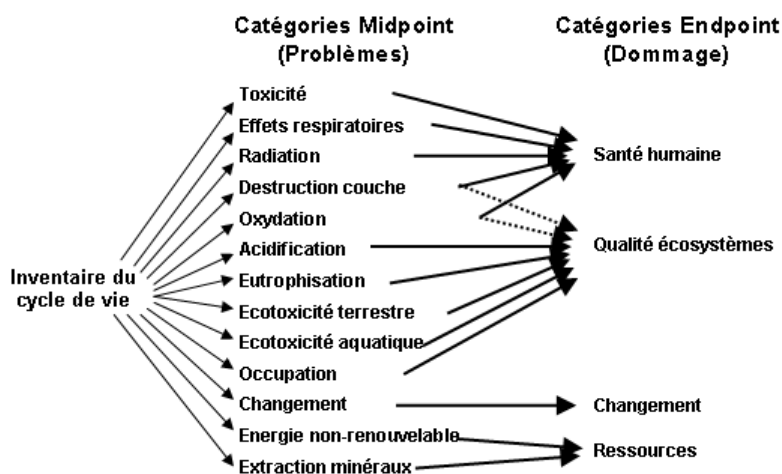


Figure 1-5: Catégories d'impacts de la méthode Impact 2002+, adaptée de (Humbert et al., 2004)

L'interprétation des résultats nécessite une vision autocritique des résultats obtenus et des conclusions qui en découlent et ce, pour chacune des phases de l'ACV. Le processus est itératif et il est fortement conseillé de modifier certaines hypothèses préalables à l'étude afin de vérifier si celles-ci modifient les conclusions obtenues. Cette étape peut également comporter une analyse de contributions, une évaluation de l'incertitude et/ou une analyse de sensibilité. Une analyse de contribution constitue en l'identification des principaux contributeurs, sous la forme des procédés du cycle de vie et/ou des polluants, aux impacts potentiels par catégorie(s) d'impact(s). L'analyse de sensibilité consiste notamment à évaluer les impacts potentiels à l'aide d'une ou plusieurs méthodes différentes d'évaluations des impacts du cycle de vie afin de vérifier que les conclusions obtenues (e.g. produit A est favorable au produit B) ne sont pas tributaires de la méthode d'impact sélectionnée. Finalement, l'analyse de l'incertitude permet de supporter les conclusions de l'ACV. Dans le cas où la différence des impacts potentiels entre le produit A et le produit B est supérieure à l'incertitude, alors A sera favorable au produit B. Dans le cas contraire, il est impossible de départager le produit A du produit B.

1.2.1 L'évaluation des impacts du cycle de vie (ACVI) : l'importance des facteurs de caractérisations régionalisés.

Les impacts potentiels lors de la phase ACVI sont quantifiés à l'aide du score d'impact (eq. 1.1; (Udo de Haes et al., 2002)). Pour un compartiment (air, eau, sol) donné, l'impact est le résultat de la multiplication entre la quantité d'un polluant émis (M_p) et de son facteur de caractérisation (FC) associé et sommé sur tous les polluants p participant à la catégorie d'impact.

$$I_j = \sum_{p=1 \dots x} (M_p \times FC_{j,p}) \quad (1.1)$$

Où I_j (e.g. unité en [PNOF]; la fraction des espèces de plantes qui ne peuvent survivre sous les propriétés de sol définis) représente l'impact potentiel de la catégorie d'impact j (e.g : l'acidification), M_p [e.g. kg SO₂] est l'unité du polluant p et $FC_{j,p}$ [e.g. PNOF/kg SO₂] représente le facteur de caractérisation du polluant p pour la catégorie d'impact j .

Un FC est une représentation mathématique d'une chaîne cause-effet (e.g. Figure 1-6). Cette dernière fait le lien entre l'émission et l'impact potentiel d'une catégorie d'impact (ex. santé humaine, perte de biodiversité). Il existe deux types de FCs : problèmes (« midpoint ») et dommages (« endpoint ») (voir Figure 1-6).

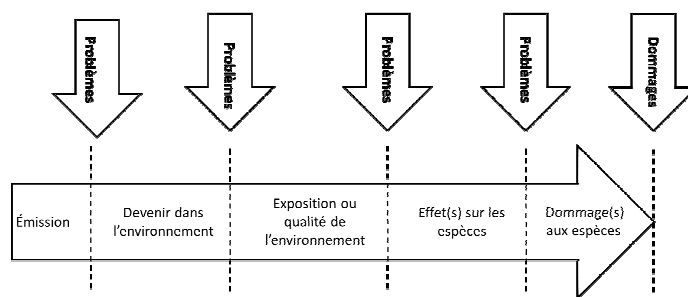


Figure 1-6: Différence entre facteurs de caractérisation problèmes et dommages (van Zelm, 2010)

Les FCs problèmes modélisent une partie de la chaîne cause-effet et sont définis, en théorie, au point d'équilibre (Figure 1-7) entre la pertinence environnementale et de l'incertitude (provenant de l'interprétation des résultats et de l'incertitude liée aux modèles employés). En contrepartie, les FCs de type dommage modélisent la totalité de la chaîne cause-effet (jusque, par exemple, la santé humaine ou la perte de biodiversité). L'avantage d'une évaluation dommage réside dans le fait qu'elle trône au sommet de la pertinence environnementale et qu'il est possible d'agréger

différentes catégories d'impacts entre elles (ex. acidification, eutrophisation, écotoxicité), puisqu'ils ont la même unité (e.g. PNOF/kg émis), afin de donner une information simplifiée aux décideurs.

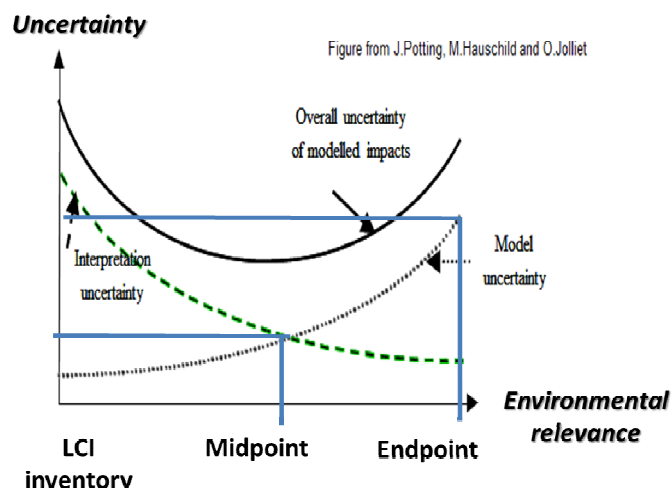


Figure 1-7: Définition théorique du facteur de caractérisation problèmes (« midpoint » et dommages (« endpoint ») en fonction de la pertinence environnementale et de l'incertitude, adapté de (Margni & Lessage, 2009)

En se basant sur le cadre général des polluants émis à l'atmosphère, un FC (e.g. [perte de biodiversité/kg émis]) dommage est obtenu, pour un lieu d'émission donné, par la somme de la multiplication de trois facteurs (Udo de Haes et al., 2002). Ces facteurs sont : le facteur de devenir atmosphérique (FF; e.g. [kg déposé/kg émis]) qui répond à la question « où va le polluant? », le facteur de la sensibilité des écosystèmes ou du devenir des milieux récepteurs (SF ou RF; e.g. [concentration de H⁺ dans les milieux récepteurs/kg déposé]) « est-ce que quelqu'un/quelque chose est affecté? » et le facteur d'effet (EF; e.g. [PNOF/concentration de H⁺ dans les sols]) « quelles sont les conséquences? ». Ces facteurs peuvent être calculés séparément par des modèles environnementaux et combinés par la suite grâce à l'équation 1.2.

$$CF = \sum (FF \times SF \times EF) \quad (1.2)$$

Historiquement, les FCs étaient obtenus suite à la modélisation d'environnements génériques (Potting & Hauschild, 2006). L'avantage de cette approche résidait dans la simplicité. En effet, il

était possible d'évaluer l'impact potentiel « moyen » de n'importe quelle substance à travers le monde. Cette situation était fort utile puisque, bien souvent, le lieu d'émission était inconnu.

Cependant, à la fin des années 1990, il fut montré que le lieu d'émission et les conditions environnantes influençaient l'évaluation des impacts potentiels (Potting, Schöpp, Blok, & Hauschild, 1998). En effet, il fut montré que la variabilité spatiale inhérente au lieu d'émission pouvait faire varier le FC de plusieurs (typiquement un ordre de grandeur pour l'acidification et plus de deux pour d'autres catégories d'impact comme la toxicité) ordres de grandeur, modifiant d'autant, le score d'impact (voir Figure 1-8).

L'incorporation des caractéristiques du lieu d'émission et des milieux récepteurs dans la modélisation environnementale est considérée comme étant significative pour de nombreuses catégories d'impacts régionales ou locales telles que l'acidification (aquatique et terrestre), l'eutrophisation (aquatique et terrestre), le smog photochimique, la toxicité humaine, l'écotoxicité et l'utilisation des terres (Toffoletto, Bulle, Godin, Reid, & Deschênes, 2007). Par conséquent, les conclusions d'une ACV (produit A est favorable au produit B) peuvent potentiellement être inversées selon le lieu d'émission. Ainsi, la validité des évaluations environnementales basées sur des facteurs génériques fut remise en question (Potting & Hauschild, 2006).

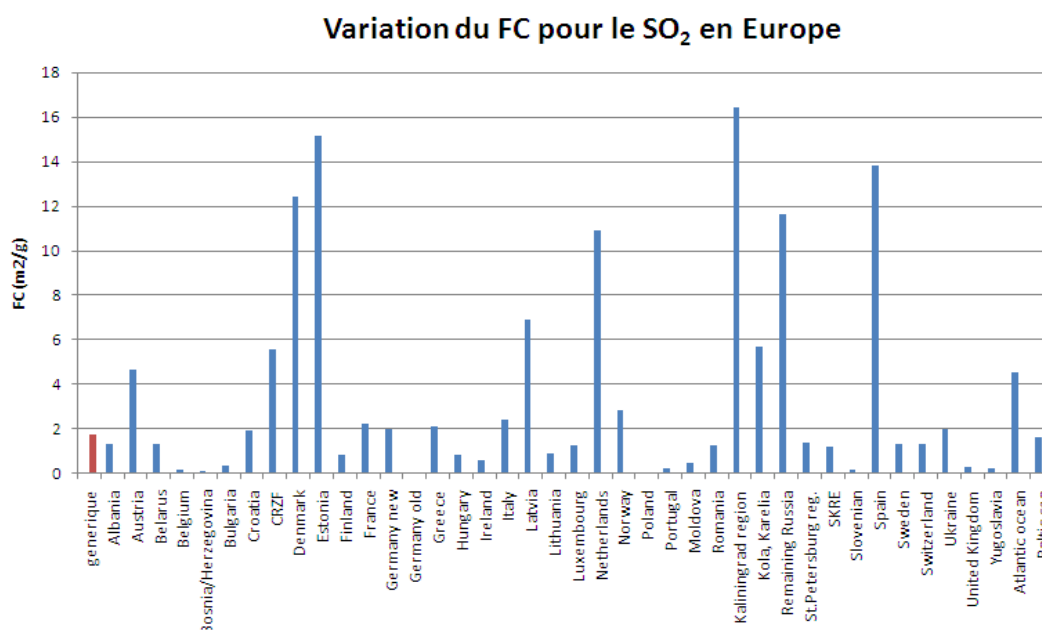


Figure 1-8: Variations des FCs acidification terrestre pour une émission de SO₂ en Europe : facteur européen générique (rouge, 1er à gauche) et par pays européen (bleu, 2ei et suivants) avec

la méthode EDIP 2003 (Hauschild & Potting, 2003). Le FC représente l'aire [m²] des écosystèmes dont la déposition dépasse la charge critique par gramme [g] de substances acidifiantes émises

Ainsi, les FCs développés depuis la fin des années 1990 intégrèrent, sous une certaine forme plus ou moins détaillée, des caractéristiques du lieu d'émissions et/ou des milieux récepteurs. Les FCs furent développés en considérant, alternativement, des paramètres spécifiques à l'Europe, aux États-Unis, au Canada et au Japon (voir tableau 1.1).

Cependant, cette façon de faire est maintenant décriée comme étant incomplète et pouvant mener à de fausses conclusions. En effet, plusieurs experts déplorent le manque de FCs régionalisés à l'échelle mondiale (Mutel & Hellweg, 2009; Posch et al., 2008). En effet, les émissions qui ont lieu tout au long du cycle de vie d'un produit, service ou procédé peuvent provenir de multiples régions géographiques (e.g. Chine, États-Unis, Europe). Dans un tel contexte, et en l'absence de FCs à l'échelle mondiale, les praticiens émettent alors, implicitement, l'hypothèse que toutes les émissions sont localisées dans le lieu géographique représentatif des FCs. Ainsi, lors de l'emploi de FCs européens, par exemple, l'impact lié à l'émission de 1 kg de SO₂ en Chine est alors considéré comme équivalent à l'impact résultant de l'émission de 1 kg SO₂ en Europe. Sachant que les impacts varient en fonction du lieu d'émission et des milieux récepteurs environnants, cette hypothèse s'avère donc erronée dans le cadre d'une économie mondiale où il existe de nombreux échanges intercontinentaux.

1.2.2 Modélisation environnementale de la catégorie d'impact « acidification » en ACVI

La chaîne cause-effet est le point de départ de la modélisation environnementale permettant de calculer des FCs. Cette dernière peut se définir comme un enchaînement logique de tous les processus environnementaux d'une catégorie d'impact; débutant par l'émission du polluant et se terminant avec l'élément que la société désire protéger soit la santé humaine, les écosystèmes et/ou les ressources (Udo de Haes et al., 2002). La figure 1-9 présente la chaîne cause-effet généralement acceptée pour l'acidification terrestre.

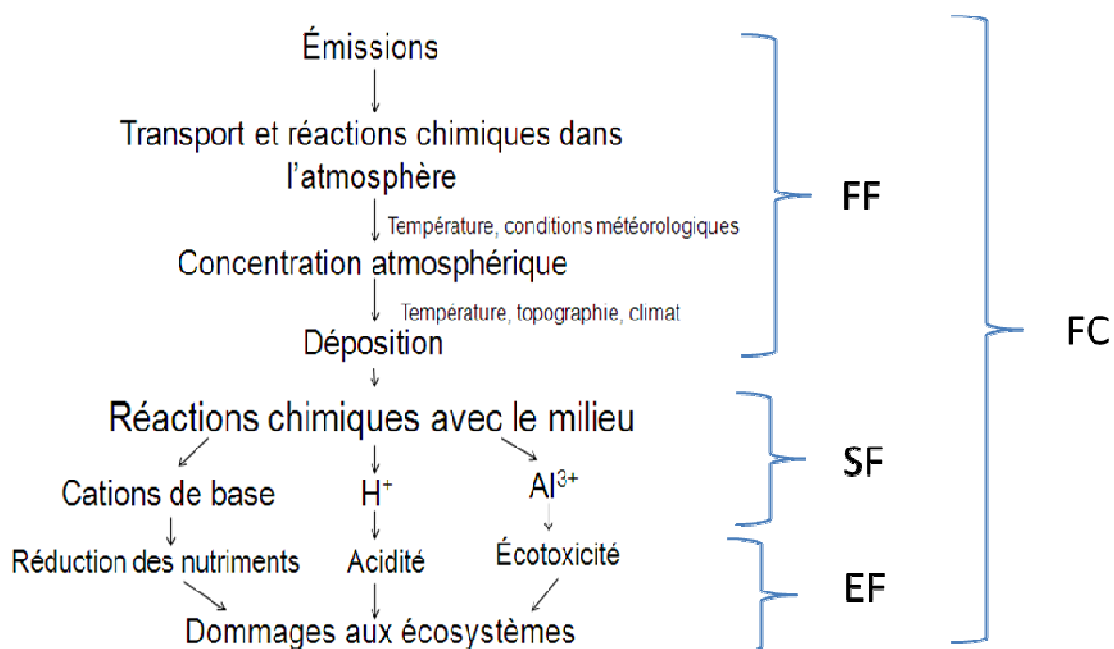


Figure 1-9: Chaîne cause-effet de l'acidification terrestre, adaptée de (Bare et al., 2002).

Bien qu'il y ait consensus en ce qui a trait à la chaîne de cause à effet, de nombreux FCs, possédant leur propre modélisation environnementale, ont été développés au fil du temps. Les FCs de types problème et dommage sont présentés aux Tableaux 1.1 et 1.2, respectivement.

En général, ces méthodes reposent sur l'approche du « changement marginal ». Cette approche émet l'hypothèse que l'addition d'un stresser quelconque introduit de faibles changements à la situation actuelle (« background ») (Huijbregts, Hellweg, & Hertwich, 2011). La situation actuelle (« background ») est le résultat de toutes les émissions et dépositions « actuelles ». L'approche du « changement marginal » est usuelle en ACVI afin de modéliser des mécanismes environnementaux non-linéaires (Huijbregts et al., 2011). Cependant, la quantification de ce que devrait être un changement marginal demeure matière à débat. En effet, de nombreux auteurs ont simplement défini le changement marginal comme étant 10% de la situation actuelle (« background ») (Huijbregts, Schöpp, Verkuijlen, Heijungs, & Reijnders, 2000; Krewitt, Trukenmüller, Bachmann, & Heck, 2001; Potting et al., 1998) alors que d'autres ont utilisés une panoplie de valeurs variant entre 1 et 50% (Seppälä, Posch, Johansson, & Hetteling, 2006; an Zelm et al., 2007).

Tous les FCs provenant de méthodes régionales présentées aux Tableaux 1.1 et 1.2 opèrent sur la base de frontières géopolitiques telles que les continents ou les pays et ce, même si la

modélisation sous-jacente a été réalisée à une échelle de résolution plus fine. Cette pratique est mise en application puisque la localisation des données d'inventaires du cycle de vie est soit inconnue ou peut être approximée grossièrement ou fournie sur la base de base de données d'émission des pays.

Les sections 1.2.2.1 à 1.2.2.3 approfondissent les aspects de la modélisation environnementale du devenir atmosphérique (1.2.2.1), de la sensibilité (1.2.2.2) et de l'effet (1.2.2.3) utilisés dans les méthodes actuelles.

Tableau 1.1: Détails des FCs de type problème disponibles pour l'acidification terrestre

Méthode	Région d'application	Modélisation du devenir atmosphérique	Modélisation de la sensibilité des sols	Modélisation de la sensibilité des sols	Unités
CML 2000 (Guinée et al., 2001)	Europe	EMEP	Charge critique	« Hazard index » : fonction linéaire	kg SO ₂ eq/kg
EDIP 2003 (Hauschild & Potting, 2003)	Europe	EMEP	Charge critique	Surface des écosystèmes dépassant la charge critique : fonction étage	m ² /g
EPS 2000 (Steen, 1999)	Générique	-	-	-	H ⁺ eq/kg
Seppälä et al. (Seppälä et al., 2006)	Europe	EMEP	Charge critique	« Accumulated exceedence » : fonction linéaire	keq/t
TRACI (Bare et al., 2002)	États-Unis	ASTRAP	-	-	H ⁺ eq/kg

(-) non modélisé

Tableau 1.2: Détails des FCs de type dommage disponibles pour l'acidification terrestre

Méthode	Région d'application	Modélisation du devenir atmosphérique	Modélisation de la sensibilité des sols	Modélisation de la sensibilité des sols	Unités
Ecoindicator 99 (Goedkoop & Spriensma, 2001)	Europe	-	modélisation du pH, nutriment (N) et capacité en eau: SMART	Perte de biodiversité : MOVE	PDF×m ² ×an /kg
IMPACT 2002+ (Humbert et al., 2004)	Europe	-	modélisation du pH, nutriment (N) et capacité en eau: SMART	Perte de biodiversité : MOVE	PDF×m ² ×an /kg
LIME (Hayashi et al., 2004)	Japon	Non-spécifié	Modèle de régression : concentration d'aluminium	Perte de production des plantes : modèle de régression linéaire	NPP/kg
ReCIPE (Goedkoop et al., 2009)	Europe	Modèle : EUTREND	Saturation de base: SMART	Perte de biodiversité : modèle de régression linéaire	PNOF×m ² ×an/kg

(-) non modélisé

1.2.2.1 Acidification terrestre : modélisation du devenir atmosphérique

La modélisation du devenir atmosphérique permet d'établir le lien entre le lieu d'émission et les lieux de dépositions. Ce lien est généralement exprimé sous forme de matrices (« source receptor matrices ») où le lieu d'émission se trouve en ordonnée, les lieux de dépositions en abscisses et où les éléments de la matrice représentent la fraction de l'émission déposée. Cette fraction est définie, en ACVI, comme le facteur de devenir atmosphérique. Cette fraction est calculée à l'aide de modèle(s) atmosphérique(s). Ces modèles prennent en considération un grand nombre de paramètres météorologiques (e.g. direction des vents, pression, température, « cloud optical depth », humidité, albedo, radiations solaire, température au sol, vitesse des vents, vitesse de friction, taux de condensation, précipitation au sol), de réactions chimiques (i.e., cinétique, équilibres, photochimique), d'émissions (e.g. anthropogénique, biomasse, biogénique) et de déposition (i.e. sèche, humide, nuage). Le tout est utilisé afin de calculer des concentrations [ppm] de polluants dans l'atmosphère et des quantités [kg] de polluants déposées.

Afin de calculer les fractions d'une matrice source-récepteur liées à un lieu d'émission et pour un polluant donné, deux étapes sont typiquement nécessaires : 1) exécuter une simulation « normale » d'un modèle atmosphérique donné qui sera suivi 2) d'une seconde simulation où les émissions du polluant donné, au lieu d'émission désiré, est occulté (=0) (Seibert & Frank, 2003). Ce faisant, la différence de déposition, reliée à un lieu d'émission donné, est calculée et il est possible d'obtenir, par la suite, les fractions désirées.

Les méthodes ACVI présentées aux Tableaux 1.1 et 1.2 ont recours à des modèles régionaux spécifiques à l'Europe (EMEP (Amann, 2004) et EUTREND (Van Jaarsveld J. A., Van Pul W. A. J., & M., 1997)) ou des États-Unis (ASTRAP (Shannon, 1997)). Les modèles atmosphériques se doivent d'avoir une résolution spatiale allant de 50×50 à 500×500 km² (Potting & Hauschild, 2006) afin de permettre la différentiation des émissions entre pays ou régions à l'intérieur de ces pays. Cependant, tous les modèles atmosphériques régionaux comportent la même limitation. En effet, ces modèles ne considèrent pas les lieux d'émissions et/ou de dépositions à l'extérieur du cadre géographique déterminé par le modèle. Ce faisant, les impacts potentiels sont sous-estimés puisque l'évaluation des impacts est incomplète. Cette limitation est considérée comme une lacune majeure des méthodes actuelles (Hayashi et al., 2004; van Zelm et al., 2007).

Une façon de passer outre ce problème est d'avoir recours à un modèle atmosphérique globale qui ne crée pas de fausses frontières. Bien qu'il existe de nombreux modèles atmosphériques globaux, aucun n'a été employé dans un contexte ACVI. Hors du contexte ACV, ces modèles ont été utilisés afin de calculer des facteurs de devenir à une échelle continentale. Par exemple, Sanderson et al. (Sanderson et al., 2008) ont calculé des facteurs de devenir atmosphérique pour l'Europe, l'Amérique du Nord et le sud et l'est de l'Asie suite à une émission de NO_x ; Liu et al. (Liu, Mauzerall, & Horowitz, 2008) ont évalué la relation entre la concentration de SO_2 dans l'hémisphère nord suite à une émission dans l'est de l'Asie et Kajino et al. (Kajino, Ueda, Sato, & Sakurai, 2010) ont montré que le transport intercontinental des sulfates pouvait avoir une influence sur la qualité de l'air. Il n'existe toutefois pas d'études fournissant des facteurs de devenir à une résolution supérieure à l'échelle continentale. Bien que jamais explicitée, la demande substantielle en terme de ressources matérielles (puissance de calcul) et de temps (plusieurs années) empêche le calcul de facteurs de devenir mondiaux à une résolution permettant de différencier les émissions des pays et/ou des régions à l'intérieur d'un pays; élément requis par le contexte ACV.

1.2.2.2 Acidification terrestre : modélisation de la sensibilité des milieux récepteurs

La sensibilité des milieux terrestres vise à évaluer la capacité du milieu récepteur à « résister » à la déposition de substances acidifiantes. Cette résistance est définie par de nombreuses réactions tampons (« buffer reactions ») qui sont largement déterminées par les propriétés et les conditions environnementales du milieu récepteur. Afin d'évaluer la sensibilité dans un contexte ACVI, les méthodes actuelles ont recours à deux approches différentes soit la charge critique ou l'utilisation d'un modèle dynamique des milieux terrestres.

La charge critique (généralement en $[\text{keq} = \text{mol} \times \text{valence}/1000]$) se définit comme «un estimé quantitatif de l'exposition d'un récepteur à un ou plusieurs polluant(s) au-dessous duquel aucun effet dommageable n'est enregistré» (Kuylenstierna, Rodhe, Cinderby, & Hicks, 2001).

À l'échelle régionale, un modèle régime permanent, s'appuyant sur des bilans de masses, est typiquement utilisé afin de calculer une valeur de déposition critique (généralement en $[\text{keq}]$) pour un milieu récepteur ciblé. La figure 1-10 illustre le concept de calcul d'une telle fonction charge critique. Dans cet exemple, la déposition cumulative de S et de N (représentée par l'étoile)

est supérieure à la charge critique calculée. Le milieu, dans cet exemple, souffrirait donc des conséquences de l'acidification.

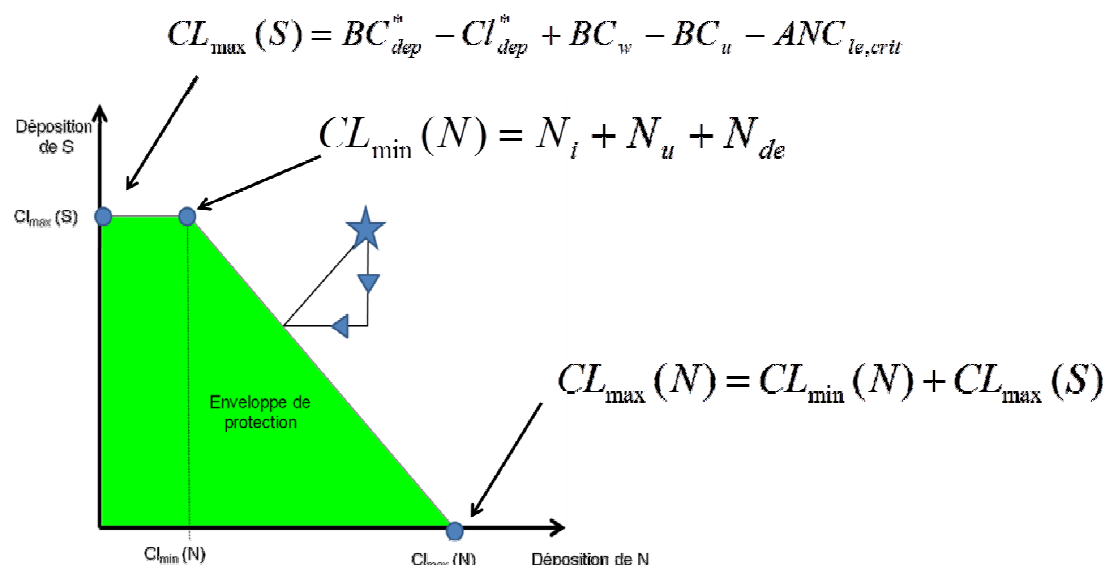


Figure 1-10: Illustration du concept de calcul d'une fonction charge critique.

Où $CL_{\max}(N)$ représente la charge critique de l'azote (N) en n'admettant aucune déposition de soufre, $CL_{\min}(N)$ représente la charge critique liée au processus à long-terme d'élimination de l'azote, N_i l'immobilisation de l'azote à long terme dans la zone des racines, N_u l'azote consommée par la végétation, N_{de} représente la dénitrification, $CL_{\max}(S)$ représente la charge critique du soufre (S) uniquement, c'est-à-dire lorsque la déposition d'azote est nulle, BC_{dep}^* la déposition des cations de bases, Cl_{dep}^* la déposition de chlore, BC_w l'érosion des cations de base, BC_u les cations de base consommés par la végétation et $ANC_{le,crit}$ la capacité critique de neutraliser l'acidité (« critical Acid Neutralizing Capacity »).

La charge critique est généralement calculée à l'aide du modèle « simple mass balance » (SMB) (Sverdrup & De Vries, 1994). D'autres modèles ont été utilisés par le passé comme le modèle régime permanent PROFILE (Warfvinge & Sverdrup, 1992) et plus récemment à l'aide de modèles dynamiques tels que MAGIC (Cosby, Ferrier, Jenkins, & Wright, 2001), SAFE (M. Alveteg, 1998; Mattias Alveteg & al, 1995; Mattias Alveteg, Walse, & Sverdrup, 1997) et SMART (Kros, Reinds, De Vries, Latour, & Bollen, 1995); recommandés par l'UNECE (Posch, Hetteling, & Slootweg, 2003). Le modèle SAFE représente le modèle dynamique s'appuyant sur le modèle PROFILE alors que SMART s'appuie sur le modèle SMB.

Le facteur $ANC_{le,crit}$ est fonction d'un indicateur chimique du sol pour lequel une valeur critique a été définie. Parmi les indicateurs utilisés, il y a : la concentration d'aluminium (Al), le ratio entre les cations de base et les ions aluminium (BC/Al), le ratio entre la concentration d'aluminium et le calcium (Al/Ca) et le pH. Le tableau 1.3 illustre les valeurs critiques utilisées, en Europe, pour le calcul du facteur $ANC_{le,crit}$. La charge critique calculée peut varier, de façon notable, selon l'indicateur chimique sélectionné. En effet, Hall et al. (Hall, Reynolds, Aherne, & Hornung, 2001) ont évalué une différence potentielle équivalente à un facteur 10 entre les charges critiques définies par les indicateurs aluminium et pH.

Tableau 1.3: Valeur critique des indicateurs chimiques pour le calcul du facteur $ANC_{le,crit}$ (Posch, de Smet, Hetteling, & Downing, 1999)

Country	Coniferous woodland	Deciduous woodland	Undistinguished forest
Austria			BC:Al
Belgium	Critical pH 4	Critical pH 4	
Bulgaria	Al:Ca = 1.5	Al:Ca = 1.5	
Finland	BC:Al = 1	BC:Al = 1	
Germany	BC:Al	BC:Al	
Ireland	pH 4.2	pH 4.2	
Norway			Ca:Al = 1
Poland	Ca:Al = 1	Ca:Al = 1	
Slovak Republic	BC:Al	BC:Al	
Sweden			BC:Al = 0.7-1.4
Switzerland			BC:Al = 1 and $Al_{leaching} < Al_{weathering}$
United Kingdom	Ca:Al = 1	Ca:Al = 1	

À l'échelle globale, la charge critique n'est plus calculée mais empiriquement définie par le jugement d'experts selon une classe de sensibilité (Bouwman & al, 2002; Kuylenstierna et al., 2001). Chaque classe a été définie par un interval de valeurs à la fois pour la capacité d'échange cationique et la saturation de base des sols. Le tableau 1.4 présente les valeurs de charge critique pour chaque classe de sensibilité

Tableau 1.4: Classe de sensibilité des charges critiques à l'échelle globale

Classe de sensibilité			Charge critique ($\text{meq m}^{-2} \text{ yr}^{-1}$)
Numéro de classe	CEC ($\text{meq}/100 \text{ g}^{-1}$) at field pH	Base saturation (%)	
1 (plus sensible)	<10	<40	12.5-25
	10-25	<20	
2	<10	40-60	25-50
	10-25	20-40	
	>25	<20	
3	<10	60-80	50-100
	10-25	40-60	
	>25	20-40	
4	10-25	60-80	100-200
	>25	40-60	
5 (moins sensible)	<25	80-100	>200
	>25	>60	

La charge critique est un outil qui a permis d'établir des protocoles de réductions d'émissions de substances acidifiantes au cours des 20-30 dernières années (Potting & Hauschild, 2006). En ce sens, cette approche est reconnue par divers gouvernements et est largement utilisée par la communauté scientifique lorsqu'il est question d'évaluer les conséquences de l'émission de substances acidifiantes.

Cependant, dans le contexte ACVI, le débat persiste à savoir si la charge critique est un indicateur approprié afin d'évaluer la sensibilité des milieux récepteurs. En effet, certains experts soulignent le fait que la charge critique est située sur un chemin parallèle (« side-track ») de la chaîne cause-effet (European Commission-Joint Research Centre, 2011); la charge critique évaluant la déposition (et possiblement l'excédent) fait un retour en arrière dans la chaîne cause-effet. De plus, bien qu'il existe certaines courbes dose-réponse, nécessaires au calcul des facteurs d'effet, liant l'excédent de déposition d'azote (NO_x , HNO_3 , NH_3 , NH_4) à une perte de biodiversité, ces courbes ne sont pas suffisantes afin d'évaluer les impacts des substances

acidifiantes à grande échelle puisqu'elles ont été évaluées pour : 1) des charges critiques empiriques, limitées presque exclusivement à l'Europe, 2) un nombre limité d'écosystèmes et 3) l'azote uniquement laissant de côté les conséquences des dépôts de soufre (SO_2 , SO_4). Ainsi, selon les conditions actuelles, l'utilisation de la charge critique résulte inéluctablement en la définition d'un FC problème. Cependant, le lien entre la sensibilité et les dommages est considéré comme un prérequis en ACVI (European Commission-Joint Research Centre, 2011).

Les méthodes qui évaluent les dommages (perte de production ou perte de biodiversité) ont recours, quant à eux, à des modèles dynamiques des milieux terrestres. Un modèle dynamique permet d'évaluer, en fonction du temps, un changement des propriétés du milieu terrestre suite à un changement de déposition [keq] des substances acidifiantes.

Par exemple, le modèle SAFE évalue la concentration d'ions H^+ à l'aide de bilans de masses en série (eqs 1.3 à 1.7). Dans ce modèle, chaque couche de sol est considérée comme un réacteur constamment agité (CSTR). Chaque couche de sol est donc considérée comme étant homogène. Pour une couche de sol donnée, le bilan de masse est donné par l'équation 1.3.

$$\underbrace{Q_0[ANC_0]}_{In} + \underbrace{r_{ANC}V}_{Production} = \underbrace{Q[ANC]}_{Out} + \underbrace{\frac{d(V[ANC])}{dt}}_{Accumulation} \quad (1.3)$$

Où Q_0 [$m^3 s^{-1}$] représente le flux volumétrique entrant, $[ANC_0]$ [$kmol m^{-3}$] la concentration d'ANC (« acid neutralising capacity ») entrant dans la couche de sol, r_{ANC} [$kmol m^{-3} s^{-1}$] le taux de production ou d'élimination de ANC, V [m^3] le volume d'eau dans la couche de sol, Q le flux volumétrique sortant et $[ANC]$ [$kmol m^{-3}$] la concentration de ANC dans la couche de sol.

Dans le cas où la couche de sol est la première (à la surface), alors $[ANC_0]$ est calculé à partir des valeurs de dépositions (eq.1.4). Les valeurs de dépositions sont données en [$kmol m^{-3}$].

$$[ANC_0] = \left(\begin{aligned} &2[Ca_0^{2+}] + 2[Mg_0^{2+}] + [K_0^+] + [Na_0^+] + [NH_4^+] \\ &- [Cl_0^-] - 2[SO_4^{2-}] - [NO_3^-] \end{aligned} \right) \quad (1.4)$$

Le taux de production ou d'élimination (r_{ANC}) des ANC est calculé à partir de l'équation 1.5

$$r_{ANC} = 2W_{BC} + W_{Na} + 2r_{E_{BC}} - 2U_{BC} + U_N + 2NM_{BC} - NM_N \quad (1.5)$$

Où W représente le lessivage (« weathering »), U la consommation par la végétation (« uptake »), NM la minéralisation (« net mineralization ») des différents ions et où r_{EBC} représente la contribution provenant des échanges cationiques. Il est à noter que le terme BC regroupe les ions Ca^{2+} , K^+ et Mg^{2+} .

En solutionnant l'équation 1.3, il est possible de définir la concentration d'ANC dans la couche de sol. La concentration d'ANC obtenue est ensuite utilisée pour calculer la concentration de H^+ dans la solution de sol à l'aide de l'équation 1.6.

$$[ANC] = \left(\begin{array}{l} [OH^-] + [HCO_3^-] + 2[CO_3^{2-}] + [R^-] \\ - [H^+] - 3[Al^{3+}] - 2[AlOH^{2+}] - [Al(OH)_2^+] \end{array} \right) \quad (1.6)$$

L'équation 1.6 peut alors s'écrire sous la forme de l'équation 1.7 où il est alors possible de calculer la concentration de H^+ (donc le pH) dans la couche de sol.

$$[ANC] = \left(\begin{array}{l} \frac{K_w}{[H^+]} + \frac{K_{H_2CO_3} K_{Henry} P_{CO_2}}{[H^+]} + 2 \frac{K_{H_2CO_3} K_{Henry} P_{CO_2}}{[H^+]} \frac{K_{HCO_3^-}}{[H^+]} \\ + \frac{K_{oliv} [DOC] \alpha}{K_{oliv} + [H^+]} - [H^+] - 3K_g [H^+]^3 - 2K_{AlOH_2^+} K_g [H^+]^2 \\ - K_{Al(OH)_2^+} K_g [H^+] \end{array} \right) \quad (1.7)$$

Où K_w représente la constante d'équilibre de l'eau, $K_{H_2CO_3}$ la constante d'équilibre entre H_2CO_3 et HCO_3^- , K_{Henry} la constante d'équilibre entre le CO_2 et le H_2CO_3 , P_{CO_2} [atm] la pression partielle du CO_2 , $K_{HCO_3^-}$ la constante d'équilibre entre le HCO_3^- et le CO_3^{2-} , K_{oliv} la constante de l'équation d'Olivier, [DOC] la concentration de carbone organique dissous [$g\ m^{-3}$], α un facteur de conversion [$kmol\ g^{-1}$], K_g la constante d'équilibre de Gibbsite, $K_{AlOH_2^+}$ la constante d'équilibre entre les ions Al^{3+} et les ions $AlOH^{2+}$ et $K_{Al(OH)_2^+}$ la constante d'équilibre entre les ions Al^{3+} et les ions $Al(OH)_2^+$.

Parmi les indicateurs chimiques du sol modélisés dans les méthodes ACVI, il y a notamment le pH, la saturation de base et la concentration d'aluminium. Le modèle dynamique SMART (Kros et al., 1995) a été utilisé de façon prépondérante en ACVI. Cependant, les modèles de sols de

types dynamique et/ou régime permanent nécessitent de nombreux paramètres de sols. La quantification de ces paramètres a été montrée difficile à l'extérieur de l'Europe (Bare et al., 2002).

1.2.2.3 Acidification terrestre : modélisation de l'effet

Les fonctions d'effets utilisées jusqu'à présent sont reliées à l'emploi de la charge critique (Tableau 1.5) ou d'un modèle dynamique de devenir des polluants dans les milieux terrestres (Tableau 1.6).

La plupart des fonctions d'effet reliées aux méthodes ayant recours à la charge critique utilise une fonction d'effet linéaire. Les fonctions discontinues « à étage(s) » (voir Tableau 1.5.-EDIP 2003) ont été jugées comme étant inacceptable dans un contexte ACV (Guinée et al., 2001). En effet, il a été avancé qu'un changement marginal (utilisé afin de modéliser des mécanismes environnementaux non-linéaires) de l'émission ne mène généralement pas vers un changement de l'effet alors que parfois cette même légère variation mène à un très grand changement de l'effet (Guinée et al., 2001). Lorsque la charge critique est utilisée, la fonction d'effet est directement liée à la déposition atmosphérique.

Tableau 1.5: Fonction d'effet liée à la charge critique

Méthode	Explication	Illustration de la fonction d'effet
EDIP 2003	<ul style="list-style-type: none"> -Calcul de la charge critique du milieu récepteur -Évalue le pourcentage d'écosystèmes non protégé en fonction de la déposition -La fonction est de type multiples étages. -Variation de la fonction suite à une émission marginale constante (10%) 	
CML 2000	<ul style="list-style-type: none"> -Calcul de la charge critique -Un excédent de la charge critique suivra une fonction 	
Seppälä	<ul style="list-style-type: none"> -Calcul de la charge critique -Évaluation de l'excédent de la charge critique 	$\sum \text{Excédent} \times \text{Area}$

L'évaluation des impacts au niveau dommage a ciblé, jusqu'à présent, les plantes vasculaires. Ces plantes ont des tissus lignifiés (« lignified tissues ») qui conduisent l'eau, les minéraux et les produits reliés à la photosynthèse dans la plante (Merriam Webster: an encyclopaedia britannica company, 2012). Les plantes vasculaires représentent la plus importante proportion ($\approx 88\%$; valeur calculée selon le ratio de 352 000 espèces de plantes vasculaires (Wild Species, 2010) sur 400 000 espèces de plantes connues (BGCI, 2012)) des espèces de plantes connues jusqu'à présent.

Ces plantes vasculaires ont été le sujet de deux aires de protections différentes en ACV soit : la perte de biodiversité (Tableau 1.1 - Ecoindicator 99 et ReCIPE) et la perte de production de la

végétation (Tableau 1.1 - LIME). Le débat persiste cependant quant à savoir quelle aire de protection devrait être utilisée afin de décrire les dommages reliés à l'acidification. Si la plupart des experts s'entendent pour privilégier la perte de biodiversité (European Commission-Joint Research Centre, 2011) d'autres maintiennent que l'évaluation d'une perte de biodiversité suite à un changement des conditions environnementales est trop difficile à quantifier (dû au manque de données reliées aux tolérances inhérentes contre l'acidité et le risque d'extinction) et privilégie donc la perte de production de la végétation sous forme de « net primary production » (NPP= Photosynthèse Grossière (« Gross photosynthesis ») – Respiration; [-]) (Hayashi et al., 2004).

De plus, les fonctions d'effets utilisés sont limitées quant à leur représentativité des écosystèmes :

La méthode Ecoindicator 99 (et IMPACT 2002+) évalue la perte de biodiversité en terme de « potentially down fraction of species » (PDF) sur près de 900 espèces de plantes retrouvées aux Pays-Bas (Goedkoop & Spriensma, 2001). Le PDF représente la fraction des espèces disparues (Humbert et al., 2004). Les auteurs ont, par la suite, émis l'hypothèse que la perte de biodiversité évaluée était représentative du continent européen (Goedkoop & Spriensma, 2001). Cette hypothèse est décriée, puisque la végétation et les sols des Pays-Bas ne sont pas représentatifs des écosystèmes européens (Guinée et al., 2001).

La méthode ReCIPE étudie la perte de biodiversité sous forme de « potentially non occurring fraction of species » (PNOF) sur de nombreuses espèces de plantes disséminées un peu partout à travers l'Europe (Goedkoop et al., 2009; van Zelm et al., 2007). Le PNOF peut se définir comme étant la fraction des espèces de plantes qui ne peuvent survivre sous les propriétés de sols définis (« PNOF is defined as the fraction of plant species that does not occur ») (van Zelm et al., 2007). Cependant, ces espèces ne se retrouvent que dans les écosystèmes « forêts »; tout autre écosystème demeure non-évalué.

Pour fin de comparaison, les PDF et les PNOF peuvent être considérés comme équivalents puisqu'ils expriment la même chose (Van Zelm, 2012).

La méthode LIME évalue la perte de NPP (« Net primary production ») sur une seule espèce de pin japonais (Hayashi et al., 2004) ce qui a été jugé comme insuffisant par les experts ACVI (European Commission-Joint Research Centre, 2011).

Tableau 1.6: Fonction d'effet liée à la modélisation dynamique

Méthode	Explication	Illustration de la fonction d'effet
Écoindicator 99/Impact 2002+	<ul style="list-style-type: none"> -Décrit la disparition des espèces de plantes en fonction de l'acidité du sol, la présence de nutriments et de l'humidité du sol. - Réponse de 900 espèces de plantes -Limité au Pays-Bas 	-
ReCIPE	<ul style="list-style-type: none"> -Évalue les dommages réels observés sur 240 espèces de plantes dans 1000 forêts européennes. -Relie la saturation de base (BS) à la PNOF (Potentially not occurring facteur) -Évalue la disparition des espèces -Le facteur de dommage est équivalent à la pente de la droite 	
LIME	<ul style="list-style-type: none"> -Évalue les dommages réels observés sur 1 espèce de pin au Japon. -Relie la déposition à la production primaire nette (NPP) -Fonction linéaire 	

1.2.3 Acidification aquatique

Les impacts potentiels de l'acidification aquatique peuvent être évalués à l'aide de quelques méthodes ACVI (voir Tableau 1.7). Cependant les méthodes ACVI les plus récentes n'ont pas pris en compte les impacts potentiels de l'acidification aquatique. En effet, les experts s'entendent pour conclure que la modélisation des impacts liés à l'acidification aquatique n'est pas suffisamment développée. En fait, il n'existe même pas de consensus au niveau des processus

environnementaux à inclure dans la chaîne de cause-effet (European Commission-Joint Research Centre, 2011). Ceci représente pourtant le point de départ de la modélisation des impacts potentiels.

Tableau 1.7: Détails des facteurs de caractérisation disponibles pour l'acidification aquatique

Méthode	Région	Type	Modélisation du devenir atmosphérique	Modélisation de la sensibilité	Fonction d'effet	Unité
Acidification aquatique						
CML 1992 (Heijungs et al., 1992)	Générique	problème	-	-	-	kg eq SO ₂
EDIP 1997 (Wenzel, Hauschild M.Z., & Alting, 1997)	Générique	problème	-	-	-	kg eq SO ₂
IMPACT 2002+ (Humbert et al., 2004)	Générique	problème	-	-	-	kg eq SO ₂
LUCAS (Toffoletto et al., 2007)	Canada	problème	ASTRAP	-	Effet égale à 0 si pH ≥ 6 et 1 si pH < 6	
Payet (Payet, 2006)	Europe	-	-	-	Linéaire	PDF

(-) non-évalué

Trois des méthodes citées au Tableau 1.7 (i.e. CML 1992, EDIP 1997, IMPACT 2002+) évaluent les impacts à l'aide du potentiel d'acidification (« acidification potential »; AP [kg eq SO₂]); un indicateur générique évaluant la capacité d'une substance émise à libérer des ions H⁺.

Cette approche néglige toute forme de modélisation environnementale. Il n'existe donc aucune différenciation spatiale. De plus, cette méthode surestime l'importance des dépôts d'azote comparativement aux dépôts de soufre puisque les dépôts d'azote peuvent être assimilés par les écosystèmes. Ainsi les conséquences des dépôts d'azote seraient moindres qu'anticipées par le potentiel d'acidification.

La fonction d'effet développée par Payet (Payet, 2006) avait pour but d'adjoindre une composante régionalisée de l'effet au modèle générique utilisé par les méthodes CML 1992, EDIP 1997 et IMPACT 2002+. Cependant, cette fonction d'effet, évaluant le PDF des invertébrés d'eau douces européens, n'est valide que si il y a épuisement de la capacité tampon du milieu aquatique (Payet, 2006). Cet élément ne peut pourtant pas être évalué par l'approche du potentiel d'acidification. En fait, puisque cette fonction n'a été ni opérationnalisée ni validée, les experts ACVI découragent son utilisation (European Commission-Joint Research Centre, 2011).

La méthode canadienne LUCAS est la seule effectuant une différenciation spatiale en tenant compte du devenir atmosphérique des substances acidifiantes dans les provinces canadiennes à l'aide du modèle atmosphérique régional ASTRAP (Shannon, 1997). La modélisation du devenir des milieux récepteurs a été simplifiée et ne considère pas la capacité tampon des milieux récepteurs (terrestres ou aquatiques). En effet, le passage des substances acidifiantes par les milieux terrestres a été approximé par la valeur moyenne des précipitations voyageant aux eaux de surfaces des différentes provinces canadiennes (Fréchette-Marleau, Bécaert, Margni, Samson, & Deschênes, 2008). Finalement, les effets sont calculés à l'aide d'une fonction étage située à pH 6. Ainsi, si l'acidité calculée résulte en un pH de 6, aucun effet n'est enregistré (EF=0). Par contre, si le pH est inférieur à 6, les effets sont maximisés (EF=1). Cependant, les fonctions à étages ont été jugées comme étant inacceptable dans un contexte ACV (voir section 1.2.2.3).

En d'autres mots, le développement méthodologique de cette catégorie d'impact a été négligé.

À l'extérieur du contexte ACV, les impacts de l'acidification des lacs ont été évalués à l'aide du principe de la charge critique [keq]. Pour ce faire, trois modèles sont généralement utilisés : le « steady-state water chemistry model » (SSWC), le « empirical diatom model » et le « first-order acidity mass balance model » (FAB) (Posch, 2004). Ces modèles sont tous basés sur la chimie actuelle des lacs (Posch, 2004). Cependant, il a été montré que ce sont les processus physico-chimiques des sols qui déterminent la gravité de l'acidification des milieux aquatiques (Jeffries & Ouimet, 2004). C'est pourquoi, il existe une approche, moins répandue, basée sur les modèles de sols, tel que PROFILE, pour modéliser les processus physico-chimiques des milieux aquatiques sur une longue période de temps afin de calculer une charge critique (Rapp & Bishop, 2003).

1.2.4 Traitement de l'incertitude en ACVI

L'ACVI préfère une estimation grossière d'un FC à laquelle est associée une valeur d'incertitude plutôt qu'aucune évaluation (Finnveden et al., 2009). D'un point de vue pratique, un processus environnemental non évalué équivaldrait à aucun impact potentiel. La détermination de l'incertitude est d'autant plus importante puisqu'elle permet d'affiner les conclusions des études ACV. Cependant, aucune méthode ACVI n'a fourni, jusqu'à ce jour, à la fois, les FCs et l'incertitude inhérente associée.

Huijbregts (Huijbregts, 2001) a défini trois types d'incertitudes en ACV : 1) l'incertitude des paramètres d'entrées, 2) l'incertitude reliée au modèle et 3) l'incertitude reliée aux choix de modélisation.

L'incertitude des paramètres d'entrées est généralement reliée à trois types d'erreur (Huijbregts, 2001) : i) l'inexactitude (reliée à la précision des données), ii) « l'unoepresentativity » (données incomplètes ou dépassées) et iii) le manque de données. Bien qu'il existe historiquement de nombreuses approches afin d'opérationnaliser l'incertitude due aux paramètres d'entrées en ACV (Beccali, Beccali, & Cellura, 1997; Chevalier & Le Téo, 1996; Hoffman, Weidema, Kristiansen, & Ersbøll, 1995; Petersen, 1997), la modélisation stochastique, telle que le résultat de simulations Monte Carlo ou « latin hypercube », est considérée comme la plus adaptée au contexte de l'ACV (Huijbregts, 2001). Afin d'effectuer une simulation de ce type, une distribution d'incertitude doit être spécifiée pour chaque paramètre d'entrée. Par la suite, la méthode fait varier aléatoirement tous les paramètres d'entrées dans leur intervalle d'incertitude définie. Une simulation Monte Carlo ne tient pas compte, à chaque pige aléatoire, du point généré lors des piges précédentes alors que la méthode « latin hypercube » le considère. Les distributions d'incertitude de types uniforme, triangulaire, normale (« Gaussian ») et/ou lognormale sont les plus fréquemment utilisées afin de spécifier la distribution d'incertitude des paramètres d'entrées (Heijungs & Frischknecht, 2005). Parmi celle-ci, la distribution lognormale est cependant considérée comme étant la plus représentative des phénomènes écologiques (Grönholm & Annala, 2007).

L'incertitude du modèle est généralement reliée à l'incertitude des paramètres. En effet, plus un modèle est complexe, plus il risquera de prendre en considération tous les processus environnementaux participants et sera à même de mieux représenter les observations de terrains. (Huijbregts, 2001). Cependant, les modèles complexes ont besoin de nombreux paramètres

d'entrées. L'incertitude du modèle peut être évaluée en comparant les valeurs simulées (provenant d'un modèle) avec des données de terrains observées.

L'incertitude liée aux choix est difficilement quantifiable (Huijbregts, 2001). La méthode couramment utilisée afin d'évaluer l'incertitude due aux choix consiste en une analyse de scénario dans laquelle de nombreux choix et hypothèses sont testées.

CHAPITRE 2 PRÉSENTATION GÉNÉRALE DES TRAVAUX

À l'issue de la revue de littérature, contextualisant la caractérisation des émissions acidifiantes, il a été possible d'identifier les manques en ACVI quant à :

- 1) l'évaluation des impacts potentiels régionalisés des émissions de substances acidifiantes dans le contexte géographique approprié à l'échelle mondiale.
- 2) l'évaluation du facteur de devenir atmosphérique qui n'inclue pas la déposition transcontinentale.
- 3) l'évaluation de la sensibilité des milieux terrestres – le prérequis en ACVI d'avoir un lien cohérent entre l'évaluation de type problème et de type dommage : la charge critique ou l'utilisation de modèles géochimiques afin de calculer un indicateur chimique du sol.
- 4) l'évaluation des impacts potentiels des substances acidifiantes sur les milieux aquatiques : le manque de modélisation du devenir atmosphérique, de la sensibilité des milieux récepteurs ainsi que de l'effet.
- 5) l'évaluation de FCs basés sur la perte de biodiversité : le manque de fonctions d'effet couvrant de nombreux écosystèmes à travers le monde.
- 6) l'évaluation de l'incertitude et de la variabilité spatiale des FCs.

Tout d'abord, ce chapitre présente l'hypothèse de recherche sur laquelle repose cette thèse ainsi que les objectifs à atteindre. Les étapes méthodologiques suivies afin de confirmer ou infirmer l'hypothèse de recherche sont également explicitées. Finalement, une introduction aux manuscrits soumis et publiés est présentée.

2.1 Hypothèse de recherche et objectifs

2.1.1 Question et hypothèse de recherche

La question de recherche de ce projet est : *Un modèle de caractérisation, basé sur le devenir atmosphérique, la sensibilité/le devenir des milieux récepteurs et l'effet tels que modélisés par des modèles environnementaux sophistiqués, est-il en mesure de générer des FCs régionalisés de types problème et dommage pour l'acidification terrestre et aquatique et de différencier davantage les impacts potentiels d'une émission de substances acidifiantes à l'échelle mondiale?*

Cette question sous-entend qu'il faudra trouver réponse à l'hypothèse de recherche sur laquelle tout repose : *il est possible de différencier les impacts potentiels de l'acidification terrestre et aquatique suite à l'émission de substances acidifiantes à l'échelle mondiale basée sur une modélisation combinant le devenir atmosphérique, la sensibilité des sols ou le devenir des milieux récepteurs et l'effet.*

Il est admis qu'il y a différenciation lorsque les FCs de deux endroits d'émissions sont significativement différents. Il est généralement admis qu'une différence significative est mesurée en ordre de grandeur.

2.1.2 Objectifs

Les objectifs principaux de ce projet sont:

1. Créer un modèle de caractérisation régionalisé pour l'acidification terrestre et aquatique sur la base de modèles sophistiqués de devenir atmosphérique, de la sensibilité/devenir des milieux récepteurs et d'effet à une échelle mondiale.
2. Générer des facteurs de devenir atmosphérique permettant de considérer la déposition transcontinentale.
3. Générer des facteurs de sensibilité terrestre compatibles avec une phase subséquente vers un indicateur de la perte de biodiversité.
4. Développer un modèle permettant d'évaluer le devenir des milieux récepteurs pour l'acidification aquatique pouvant être combiné aux courbes dose-réponses, illustrant la perte de biodiversité, existantes.
5. Générer des FCs régionalisés, de type dommage, à l'échelle globale pour l'acidification terrestre et aquatique.
6. Évaluer l'incertitude et la variation spatiale reliées aux FCs développés afin de définir et générer des FCs, de type problème, à l'échelle globale, et supporter l'interprétation lors d'étude ACV.

Le tout s'inscrit dans les efforts de la création d'une nouvelle méthode d'évaluation des impacts régionaux à l'échelle mondiale en ACVI : IMPACT World +.

2.2 Méthodologie générale

Afin d'atteindre les objectifs, il est proposé de :

- i. Créer un cadre méthodologique spécifiant les indicateurs nécessaires à l'évaluation globale de l'acidification terrestre et aquatique en tenant compte de la chaîne cause-effet dans son intégralité. (Chapitre 3)
- ii. Générer des facteurs de devenir atmosphérique régionaux à l'échelle mondiale. (Chapitre 4)
- iii. Générer des facteurs de sensibilité des écosystèmes régionalisés à l'échelle mondiale pour l'acidification terrestre. (Chapitre 5)
- iv. Calculer des facteurs d'effet régionalisés tenant compte de la perte de biodiversité des plantes vasculaires à l'échelle mondiale. (Chapitre 6)
- v. Générer des FCs régionalisés de type dommage, à l'échelle mondiale, pour l'acidification terrestre et en évaluer la variabilité spatiale ainsi que l'incertitude. (Chapitre 6)
- vi. Évaluer la variabilité spatiale et l'incertitude inhérente à chaque facteur sous-jacent des FCs dommages de l'acidification terrestre afin de définir et générer des FCs régionalisés de type problème, à l'échelle mondiale. (Chapitre 6)
- vii. Générer des facteurs de devenir des milieux récepteurs régionalisés à l'échelle mondiale pour l'acidification aquatique. (Chapitre 7)
- viii. Calculer des facteurs d'effet tenant compte de la perte de biodiversité aquatique à l'échelle mondiale. (Chapitre 7)
- ix. Générer des FCs régionalisés de type dommage, à l'échelle mondiale, pour l'acidification aquatique et en évaluer la variabilité spatiale ainsi que l'incertitude. (Chapitre 7)
- x. Évaluer la variabilité spatiale et l'incertitude inhérente à chaque facteur sous-jacent des FCs dommages de l'acidification aquatique afin de définir et générer des FCs régionalisés de type problème, à l'échelle mondiale. (Chapitre 7)
- xi. Évaluer l'apport et/ou les limites des nouveaux FCs pour les catégories d'impacts acidification terrestre et aquatique à l'aide d'une étude de cas ACV. (Chapitre 8)

2.3 Présentation des manuscrits

Le premier manuscrit (Chapitre 4) présente une approche permettant de calculer des facteurs de devenir atmosphérique à l'échelle mondiale à une résolution spatiale de $2^{\circ} \times 2.5^{\circ}$ pour l'émission de substances acidifiantes. Cette résolution est suffisamment élevée afin de différencier une émission en des lieux différents (incluant les régions à l'intérieur d'un pays) à travers le monde. Ce manuscrit visait également à montrer l'importance, dans certaines situations, de la déposition transcontinentale; un aspect ignoré jusqu'à présent en ACVI. Ce manuscrit intitulé « *Spatially-differentiated atmospheric source-receptor relationships for nitrogen oxides, sulfur oxides and ammonia emissions at the global scale for life cycle impact assessment* » a été publié dans la revue « **Atmospheric Environment** ».

Le second manuscrit (Chapitre 5) présente les résultats de la modélisation de la sensibilité des sols à l'aide du modèle en régime permanent PROFILE. Ce manuscrit présente également les résultats de la création d'une base de données des paramètres physico-chimiques des sols permettant de calculer divers indicateurs chimiques de la qualité du sol à l'aide de PROFILE. Au total, quatre indicateurs de la sensibilité ont été évalués : le ratio entre la concentration des cations de base et la concentration d'aluminium (BC/Al), le ratio entre la concentration d'aluminium et de la concentration de calcium (Al/Ca), la concentration d'ions H^+ (via le pH) et la concentration des ions aluminiums (Al). L'incertitude du facteur de sensibilité due à la variation spatiale des données d'entrées du modèle a également été évaluée. Ce manuscrit intitulé « *Life cycle impact assessment of terrestrial acidification : modeling spatially explicit soil sensitivity at the global scale* » a été publié dans la revue « **Environmental Science & Technology** ».

Finalement, le quatrième manuscrit (Chapitre 7) présente la combinaison de la modélisation du devenir atmosphérique, du devenir des milieux récepteurs et de l'effet en un FC régionalisé à l'échelle mondiale pour l'acidification aquatique,. Le manuscrit présente également un modèle permettant d'estimer le pH des lacs. Il montre également l'influence du facteur de devenir atmosphérique, du facteur de devenir des milieux récepteurs et du facteur d'effet sur la variabilité spatiale ainsi que sur l'incertitude globale des FCs permettant la recommandation de FCs problèmes. Ce manuscrit est intitulé « *Uncertainty and spatial variability in characterization factors for aquatic acidification at the global scale* » et a été soumis à la revue « **International Journal of Life Cycle Assessment** ».

CHAPITRE 3 DÉVELOPPEMENT DE CADRES MÉTHODOLOGIQUES POUR L'ÉVALUATION DES IMPACTS POTENTIELS DE L'ACIDIFICATION TERRESTRE ET AQUATIQUE

Cette section vise à définir les cadres méthodologiques ainsi que les indicateurs nécessaires au calcul des FCs de l'acidification terrestre et aquatique.

3.1 Acidification terrestre

Le FC dommage développé pour l'acidification terrestre a été défini comme étant le changement marginal de la perte de biodiversité des plantes vasculaires (« potentially not occurring fraction of vascular plant species (PNOF) ») sur la surface des milieux récepteurs terrestre j suite au changement marginal d'émission du polluant p au lieu d'émission i . Les FCs sont basés sur la perte de biodiversité afin de caractériser l'aire de protection « environnement naturel ».

Le processus de conversion d'une émission en un indicateur dommage est présenté par l'équation 3.1. Ce FC peut être subdivisé en un facteur de devenir atmosphérique (FF), un facteur de sensibilité des sols (SF) et d'un facteur d'effet (EF). Les FCs sont exprimés en tant que $[m^2 \times yr \times kg_{emitted}^{-1}]$.

$$FC_{i,p} = \sum_j (FF_{i,j,p} \times SF_{j,p} \times EF_j) \quad (3.1)$$

Où FF [$keq \ yr^{-1} \ kg_{emis}^{-1} \ yr$] représente le lien entre le lieu d'émission et le lieu de déposition, SF [indicateur $m^2 \ keq^{-1} \ yr$] quantifie le changement d'un indicateur de la sensibilité des milieux récepteurs suivant la déposition du polluant p dans le milieu récepteur j et EF [indicateur $^{-1}$] lie le PNOF (« Potentially non-occurring fraction of species ») des plantes vasculaires au changement de la qualité des écosystèmes.

La Figure 3-1 détaille les étapes nécessaires afin de générer des FCs de types problème et dommage pour l'acidification terrestre.

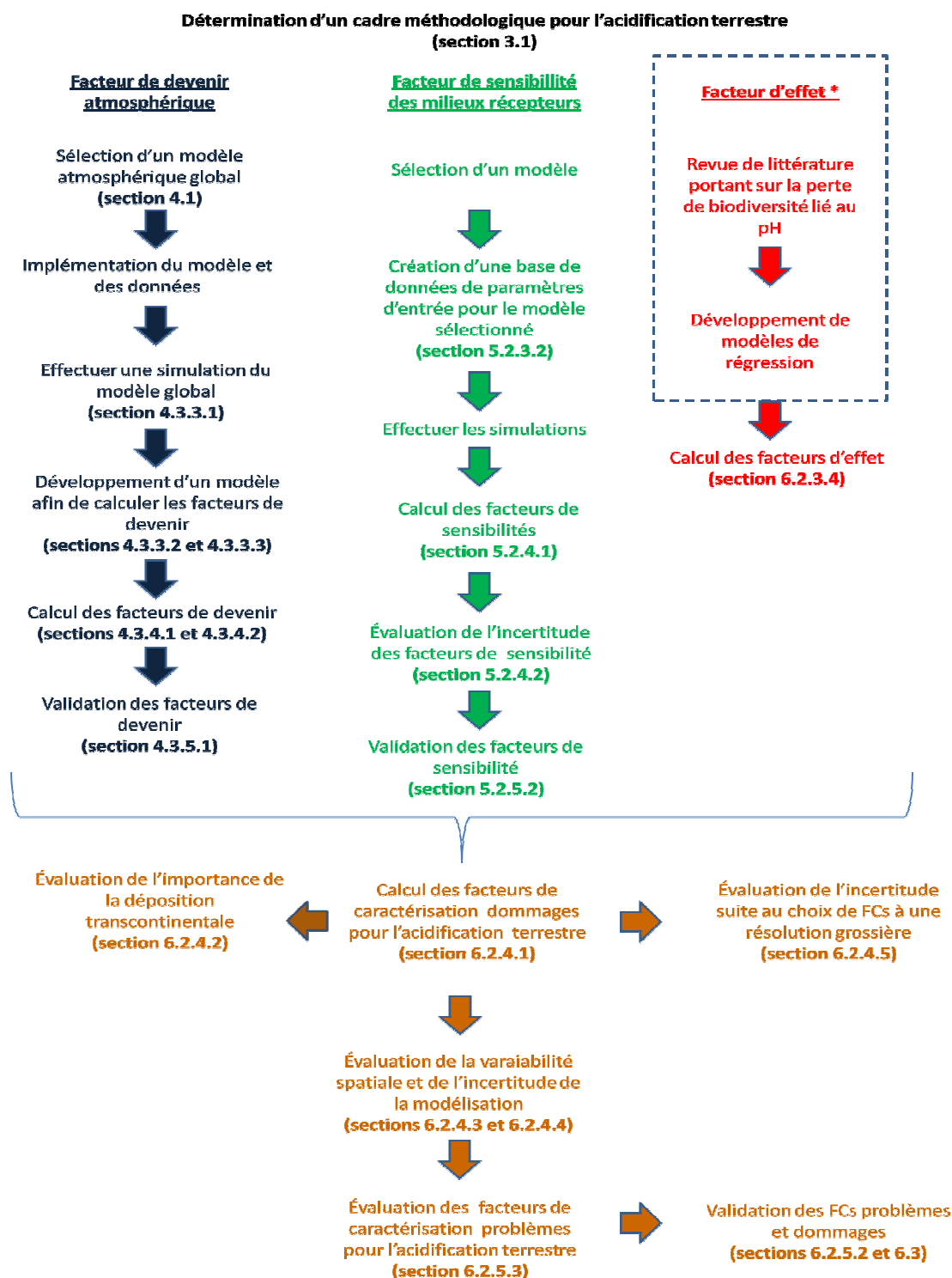


Figure 3-1: Étapes nécessaires afin de générer des FCs de types problème et dommage pour l'acidification terrestre. (Zone pointillée : travail réalisé en collaboration)

Les modèles de régressions, liant le pH à la perte de biodiversité des espèces de plantes vasculaires, nécessaires afin de calculer les facteurs d'effet ont été obtenus suite à une collaboration avec l'université de Radboud aux Pays-Bas.

3.2 Acidification aquatique

Le FC dommage développé pour l'acidification aquatique a été défini comme le changement marginal de la perte de biodiversité des espèces de poissons (« potentially down fraction of species », PDF) par surface des lacs k suite au changement marginal d'émission du polluant p au lieu d'émission i .

Le processus de conversion d'une émission en un indicateur dommage est présenté par l'équation 3.2. Ce FC est subdivisé en un facteur de devenir atmosphérique (FF), un facteur de devenir des milieux récepteurs (RF) et d'un facteur d'effet (EF). Les FCs sont exprimés en tant que $[\text{m}^2 \times \text{yr} \times \text{kg}_{\text{emitted}}^{-1}]$ et ne sont valides que pour les lacs.

$$CF_{i,p} = \sum_g \left(FF_{i,g,p} \times \sum_k RF_{g,k,p} \times EF_k \right) \quad (3.2)$$

Où FF [$\text{keq yr}^{-1} \text{ kg}_{\text{emis}}^{-1} \text{ yr}$] représente le lien entre le lieu d'émission et le lieu de déposition, RF [$\text{mol L}^{-1} \text{ m}^2 \text{ keq}^{-1} \text{ yr}$] quantifie le changement de la concentration d'ions H^+ dans le lac k suivant la déposition du polluant p dans la grille atmosphérique g et EF [$(\text{mol L}^{-1})^{-1}$] lie le PDF (« potential down fraction of species ») des poissons au changement de la qualité des écosystèmes.

La Figure 3-2 détaille les étapes nécessaires afin de générer des FCs de types problème et dommage pour l'acidification aquatique.

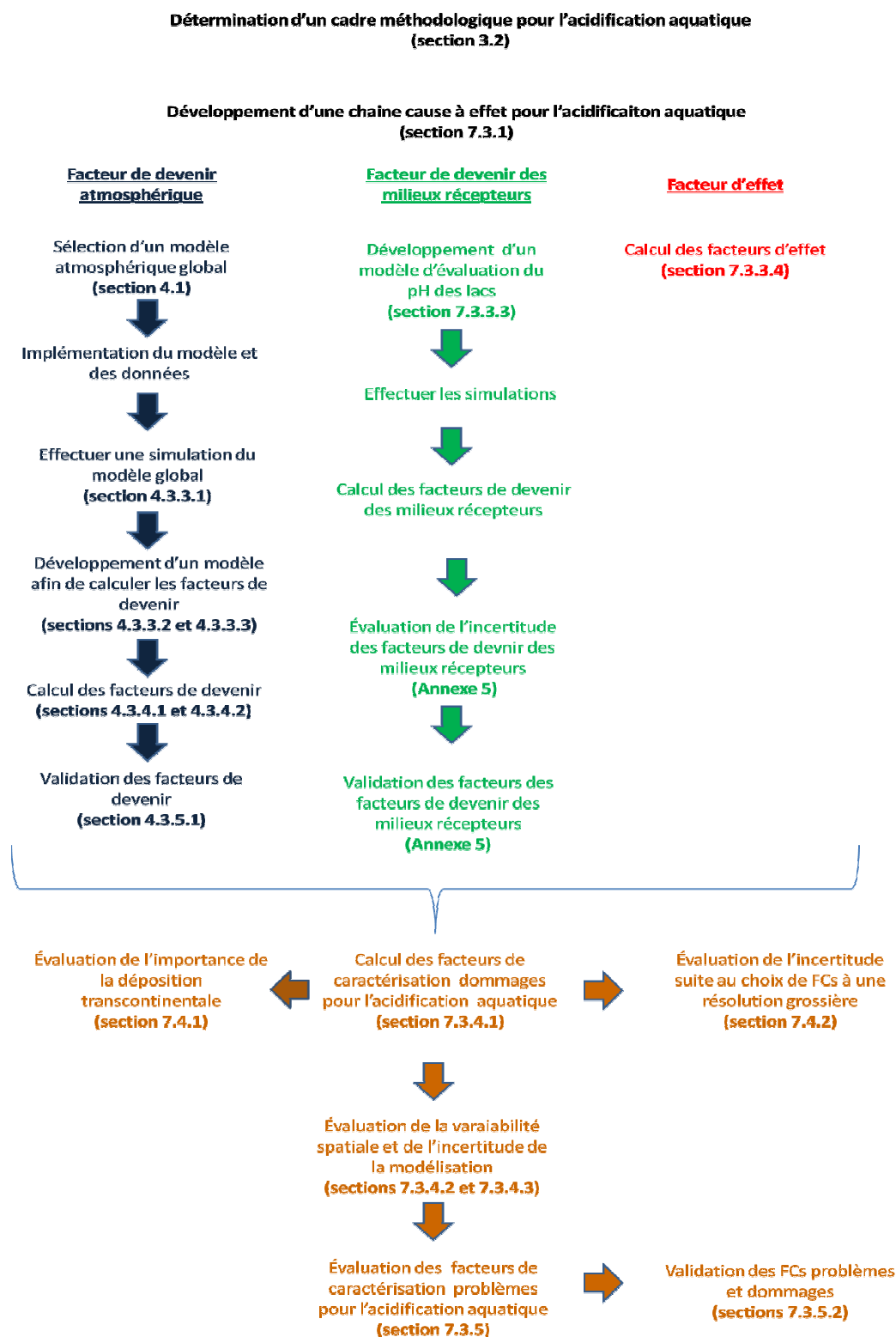


Figure 3-2: Étapes nécessaires afin de générer des FCs de types problème et dommage pour l'acidification aquatique.

3.3 Évaluer l'apport et/ou les limites des FCs générés à l'aide d'une étude de cas ACV

L'apport et/ou les limites des FCs générés ont été évalués à l'aide d'une étude de cas. Cette étude de cas est basée sur une version mise à jour, par le Dr Cécile Bulle, de l'exemple provenant du livre « Analyse du cycle de vie : comprendre et réaliser un éco-bilan » (Jolliet, Saadé, & Crettaz, 2005) dont l'objectif est de comparer les impacts potentiels liés au cycle de vie de blocs avant, pour une automobile, faits de différents matériaux : en acier, en composite, en aluminium et en aluminium recyclé. Cette étude de cas, présentée au Chapitre 8, cible uniquement les catégories d'impacts de l'acidification terrestre et aquatique.

CHAPITRE 4 DÉVELOPPEMENT DE FACTEURS DE DEVENIR ATMOSPHERIQUE RÉGIONAUX À L'ÉCHELLE MONDIALE

Cette section est divisée en trois parties distinctes centrée autour du premier manuscrit intitulé « *Spatially-differentiated atmospheric source-receptor relationships for nitrogen oxides, sulfur oxides and ammonia emissions at the global scale for life cycle impact assessment* » (section 4.3) publié dans la revue Atmospheric Environment (soumis le 18 septembre 2011, accepté le 30 juillet 2012). Cette section comprendra également le résumé d'un manuscrit (jamais soumis) portant sur la sélection multi-critère du modèle atmosphérique utilisé afin de calculer des facteurs de devenir atmosphérique (section 4.1) et une sous-section présentant un survol du manuscrit (section 4.2).

4.1 Sélection d'un modèle atmosphérique global

Il existe de nombreux modèles de dispersion et de dépositions atmosphériques. Certains sont régionaux alors que d'autres couvrent la planète. Une revue de littérature a montré qu'il en existait minimalement près d'une trentaine (voir Annexe 1). Il a donc été nécessaire de définir des critères d'évaluation qui permettront de choisir le modèle le plus adapté afin de générer des facteurs de devenir atmosphérique. La sélection du modèle a été effectuée à partir d'une élimination basée sur les quatre critères suivants :

1. L'application à l'échelle planétaire du modèle
2. La modélisation des SO_x, NO_x and NH_x
3. La représentativité des observations
4. La résolution spatiale

Le premier critère s'assure qu'il est possible de générer des facteurs de devenir atmosphérique à l'échelle mondiale et d'évaluer la déposition transcontinentale. Le second critère s'assure que les substances principalement responsables de l'acidification sont considérées. Le troisième critère évalue la justesse des différents modèles puisqu'ils utilisent des paramètres physico-chimiques, des données météorologiques et des sources d'émissions différentes (Lui et al., 2007). Le modèle sélectionné devra représenter, le mieux possible, les valeurs des dépôts acides observées à l'échelle planétaire. Un autre élément qui peut jouer un rôle dans la représentativité des

observations est la résolution spatiale horizontale. En effet, la justesse du modèle a tendance à s'améliorer avec une résolution accrue suite à une précision de la localisation du point d'émission (Krol et al., 2005; Tang, 2002). Cette situation est d'autant plus importante lorsque les zones urbaines sont considérées (Krol et al., 2005; Tang, 2002).

Le processus d'élimination des modèles, basé sur les quatre critères, a été appliqué à la trentaine de modèles répertoriés à l'Annexe 1. Suite à l'évaluation des deux premiers critères, il a été possible de constater que seuls les modèles GEOS-Chem, MOZART 4, MOZ2 GFDL, STOCHEM-Hadm3, STOCHEM-HadGEM, TM4 et TM5 pouvaient être considérés pour les phases d'évaluations subséquentes.

Le troisième critère a été évalué à l'aide de l'équation 4.1, développée spécifiquement pour cette évaluation :

$$Score_évaluation = \frac{(NO_3(\%) * RI_{NO} + NH_4(\%) * RI_{NH} + SO_4(\%) * RI_{SO})}{3} \quad (4.1)$$

Où [NO₃ (%), NH₄ (%) and SO₄ (%)] représente le pourcentage de points compris dans un intervalle de $\pm 50\%$ de l'intersection parfaite entre les résultats du modèle et les observations de terrain pour chacune des substances chimiques. Ces résultats ont été obtenus de Dentener et al. (Dentener, 2006a, 2006b, 2007) qui ont étudié 23 modèles de dispersion et déposition atmosphérique afin de calculer la déposition future des NO_x et NH_x et SO_x. Les paramètres [RI_{xx}] sont des facteurs de pondération associés à l'importance relative de chacune des substances quant à la problématique de l'acidification. Ces paramètres ont été dérivés à partir des résultats de normalisation de facteur européens, développés par van Zelm et al. (2007), pour un horizon de temps de 100 ans.

Les résultats de score d'évaluation obtenus sont présentés au tableau 4.1. À l'échelle mondiale, aucun des modèles ne se démarquent véritablement des autres. Au niveau régional (Europe et Amérique du Nord), les modèles GEOS-Chem (64,6%), STOCHEM-Hadm3 (63,1%) et TM5 (64,1%) se démarquent.

Tableau 4.1: Score d'évaluation (%) pour chacun des modèles restant à travers le monde

	GEOS CHEM	MOZ2 GFDL	STOCHEM- Hadm3	STOCHEM- HadGEM	TM4	TM5	Moyenne de la région
Régions avec < 30 observations							
Afrique	56.0	66.7	61.3	72.0	58.7	38,2	59
Asie du Sud –Est	37.5	50.1	31.5	51.3	68.3	57,9	49
Amérique du Sud	47.5	38.9	41.9	47.5	41.9	46,7	42
Endroits isolés	41.8	36.3	42.5	35.5	45.5	52,1	44
Régions avec > 30 observations							
Amérique du Nord	59.9	57.8	60.6	50.4	38.3	61.6	55
Europe	69.4	67.1	65.5	62.3	43.5	66.6	62
Inde	26.1	24.3	39.2	39.9	26.3	33.1	31
Résultats agrégés							
Score global moyen pour l'Amérique du Nord et l'Europe	64.6	62.5	63.1	56.4	40.9	64.1	-
Score global moyen pour les régions ayant >30 observations	51.8	49.8	55.1	50.9	36.0	53.8	-
Score global moyen pour les régions ayant <30 observations	45.7	48.0	44.3	51.6	53.6	48.7	-
Score global moyen pour le MONDE	48.3	48.7	49.0	51.3	46.1	50.9	-

Finalement, le tableau 4.2 présente la résolution spatiale des modèles GEOS-Chem, STOCHEM-Hadm3 et TM5. Selon ces résultats, GEOS-Chem possède la résolution spatiale la plus fine à l'échelle mondiale. Ainsi, le modèle GEOS-Chem est recommandé afin de servir de base pour le développement des facteurs de devenir atmosphérique.

Tableau 4.2: Résolution spatiale des modèles

	GEOS Chem (Harvard, 2008)	STOCHEM- Hadm3 (Dentener, 2006a)	TM5 (Utrecht_Universiteit, 2008)
Résolution spatiale horizontale (Lat xLong)	4°x5° 2°x 2.5° 1°x 1° *	5°x5°	4°x 6° 2°x 3° * 1°x 1° *

* uniquement pour certaines régions

4.2 Présentation du premier manuscrit

Le premier manuscrit élabore une approche permettant de calculer des facteurs de devenir (FF) régionalisés à l'échelle mondiale à partir des résultats d'une simulation annuelle du modèle atmosphérique GEOS-Chem. Cette approche rend possible l'évaluation des impacts potentiels de la déposition transcontinentale tout en maintenant une différenciation spatiale régionale entre les lieux d'émissions. Cette approche est basée sur une succession de bilans de masse afin de calculer, pour chaque compartiment atmosphérique (i.e. la rencontre entre une maille du grillage horizontale et d'un niveau d'altitude) le transport vers les compartiments atmosphériques voisins ainsi que la déposition entre le compartiment d'intérêt et le surface terrestre. Les FFs obtenus ont également été agrégés au niveau continental et des pays. Les FFs obtenus par cette approche ont été comparés : i) aux facteurs de devenir obtenus par soustraction suite à deux simulations de GEOS-Chem, l'une incluant et l'autre excluant les émissions d'une zone prédéfinie, ii) aux FFs obtenus à partir des modèles globaux existants et iii) aux facteurs de devenir du modèle unifié de l'EMEP qui représentent l'état de l'art des facteurs de devenir en ACVI.

4.3 “Spatially-differentiated atmospheric source-receptor relationships for nitrogen oxides, sulfur oxides and ammonia emissions at the global scale for life cycle impact assessment”

4.3.1 Abstract

This paper aims to advance regional worldwide source-receptor relationships, providing fate factors for acidifying and eutrophying air emissions (NO_x, HNO₃, SO₂, SO₄ and NH₃) to be used

within life cycle impact assessment. A simulation for the reference year 2005 of the three-dimensional global scale tropospheric GEOS-Chem model was used as the basis of a novel methodological approach to derive source-receptor matrices (SRMs) whose elements are fate factors at a global $2^{\circ} \times 2.5^{\circ}$ grid. This new approach makes it possible to assess the impact of transboundary emissions while maintaining regional scale emission differentiation. These $2^{\circ} \times 2.5^{\circ}$ grid resolution fate factors were later aggregated at continental and country resolutions using emission weighting. Continental fate factor results showed that 50 to 70% of nitrogen oxides (NO_x , HNO_3) and sulfur oxides (SO_2 , SO_4) and approximately 80% of ammonia (NH_3) emissions will deposit on the same continent. Results showed that the developed fate factor derivation approach was within a $\pm 10\%$ agreement with GEOS-Chem simulations in which fate factors were determined by withdrawing the regional emission inventory over Canada and in $\pm 50\%$ agreement with current state-of-the-art LCIA fate factors (calculated with the European Monitoring and Evaluation Programme (EMEP) model). The SRMs outlined in this paper facilitate further modeling developments without having to run the underlying tropospheric model, thus opening the door to the assessment of the regional life cycle inventories of a global economy.

4.3.2 Introduction

Life cycle assessment (LCA) aims to compile and evaluate the inputs, outputs and potential environmental impacts of a product or service throughout its entire life cycle, from material extraction to end-of-life (Udo de Haes et al., 2002). Inputs and outputs are compiled in the life cycle inventory (LCI) phase and then classified into different impact categories. Among the considered life cycle impact assessment (LCIA) impact categories are acidification and eutrophication, which are related to the atmospheric deposition of inorganic substances such as sulfates and nitrates (Environment Canada, 2004; European Environment Agency, 2005). Evaluating potential impacts requires characterization factors (CF) [$\text{Impact} \cdot \text{kg emitted}^{-1}$] that link life cycle inventory results to an impact score that is specific to a given impact category (Udo de Haes et al., 2002). Following the general framework of emission-related impact categories (Udo de Haes et al., 2002), the CF is calculated as the product of an atmospheric fate factor, an exposure factor (or, alternatively, an ecosystem sensitivity factor) and an effect factor, which are each calculated with one or several environmental models describing the biophysical

relationships along the cause-effect chains from an emission to a given impact indicator. This paper specifically focuses on the development of atmospheric fate factors.

Atmospheric fate factors [$\text{kg}_{\text{deposited}} * \text{kg}_{\text{emitted}}^{-1}$] represent the climatic conditions (e.g. dispersion, atmospheric transport, etc.) and deposition mechanisms between the source and receptor locations (i.e. the source-receptor relationship) in a single fraction. Since there are many receptor elements and/or many sources, source-receptor relationships are written as a source-receptor matrix (SRM) whose elements are fate factors; each line is a source location and each column a receptor location. The main advantage of SRMs is simplicity. For a given source vector, the resulting receptor values can be obtained by a simple matrix-vector multiplication, avoiding the evaluation of the entire numerical model of the transport and dispersion processes (Seibert and Frank, 2003).

SRMs are used in LCIA to support CF development for acidifying and eutrophying chemicals (Bare et al., 2002; Fréchette-Marleau et al., 2008; Huijbregts et al., 2000; Potting et al., 1998; Seppälä et al., 2006; van Zelm et al., 2007). In such cases, SRM derivation relies on a number of regional atmospheric models referring to a specific geographic context—North America or Europe—typically covering the spatial range of the continental scale and with the typical spatial resolutions of countries or regions within countries (scale 50–500 km) (Potting & Hauschild, 2006). Restricted spatial ranges make it possible to include more sophisticated location-specific approaches and thus yield more reliable fate factors (Bare et al., 2002). On the other hand, emissions traveling outside the model's region of interest are not taken into account. Impact assessment is therefore incomplete, consequently diminishing the relevance of the LCA (Hayashi et al., 2004; van Zelm et al., 2007). Furthermore, the models do not facilitate a coherent assessment of life cycle emission inventories occurring outside their geographical context, as is often the case in a global economy (e.g. a North American emission is considered and modeled as a European emission).

Outside LCA, transboundary emissions were analyzed with global models: the spatial resolution was coarser and there was no differentiation between countries or regions. For example, Sanderson et al., (Sanderson et al., 2008) provided continental SRMs for Europe, North America, South Asia and East Asia; Liu et al. (Liu et al., 2008) studied source-receptor relationships between East Asian sulfur dioxide emissions and northern hemisphere sulfate concentrations and

Kajino et al. (Kajino et al., 2010) showed that the intercontinental transport of sulfate aerosols could potentially influence regional air quality. Though it has never been explicitly stated, the reason for lowering the spatial resolution is applicability. SRM determination is costly in terms of computing, since simulations must be rerun for each source location or a separate species must be tracked for each source element (Seibert & Frank, 2003).

This paper aims to derive worldwide SRMs for sulfur oxides (SO_2 , SO_4), nitrogen oxides (NO_x (i.e., NO , NO_2 , NO_3 , HNO_2), HNO_3) and ammonia (NH_3) airborne emissions to support LCIA model development at a global scale, while ensuring a relatively high resolution for regional differentiation. More specifically, the objective of this project is to derive SRMs on a 2° latitude x 2.5° longitude grid resolution by using the GEOS-Chem global atmospheric model as a starting point and aggregating SRMs at a coarser resolution (i.e. country and then continental levels).

4.3.3 Method

4.3.3.1 Description of GEOS-Chem simulation

GEOS-Chem is a global 3D model of tropospheric chemistry driven by assimilated meteorological observations from the Goddard Earth Observing System of the NASA Data Assimilation Office (Bey et al., 2001). It simultaneously considers all emissions, transport, chemical transformations and deposition processes on a global level. GEOS-Chem is provided with all relevant input data.

A number of emission options were selected for the GEOS-Chem simulation. By activating the anthropogenic emission option, the model selects anthropogenic emission data from a global emission inventory by default. By selecting other options, the inventory is overwritten by more reliable regional emission inventories (if available) (see Annexe 2). Other emission source inventories, such as biofuel emissions, biomass burning emissions, biogenic emissions, ship emissions, SO_2 volcanic emissions and NO_x emissions from lightning, soils and aircrafts, were also used to complement the anthropogenic inventories. All emission inventories that were used as part of this project are presented in Annexe 2. The wet deposition scheme (Jacob, Liu, Mari, & Yantosca, 2000) that was implemented considers the direct deposition from scavenging in wet convective updraft, the in-cloud scavenging of the pollutant by precipitation of cloud droplets or ice crystals and the below-cloud scavenging by precipitation with possible re-evaporation. The

default dry deposition was also used (Bey et al., 2001). All calculated deposition values (wet + dry) refer to those reaching ground level. The model also includes various chemical mechanisms describing kinetic (dependent of temperature, high and low pressure limit) and photochemical reactions. GEOS-Chem chemical mechanisms are presented in Evans and Jingqiu (Evans & Jingqiu, 2009).

GEOS-Chem simulations were carried out with the 8-02-02 model version, updated with the “NO_x emission in southeast Asia” patch, to derive the SRMs. The year-long “NO_x–O_x–Hydrocarbon–aerosol chemistry simulation” with meteorological data for 2005 was used. The spatial resolution was set at 2°x 2.5° (i.e. 91 x 144 grids), while the vertical resolution was set by GEOS 5’s 47 sigma vertical layers, ranging from an altitude of 0 km (ground level) to 85 km (Yantosca, 2005). Overall, 615 888 (i.e. 91 x 144 x 47) air compartments were considered.

4.3.3.2 Source-receptor matrix calculation

It is impossible to directly derive SRMs from a single GEOS-Chem simulation since the model simultaneously considers all air compartment emissions, transport, chemical transformations and deposition processes on a global level. Thus, the allocation of deposition related to a given emission to the air compartment cannot be directly traced back. Furthermore, the indirect derivation of the SRMs, such as the simulations rerun for each source element, would be too resource- and time-intensive for the considered resolution (one worldwide simulation requires 7.6 days, adding up to a 273 years of continuous simulation to derive the 13 104 annual SRMs).

We therefore developed a novel simplified methodological approach to derive SRMs that consider the information provided (i.e. averaged input and output processes obtained from weekly time intervals) from an annual GEOS-Chem simulation. This approach is illustrated in Figure 4-1 and further explained below.

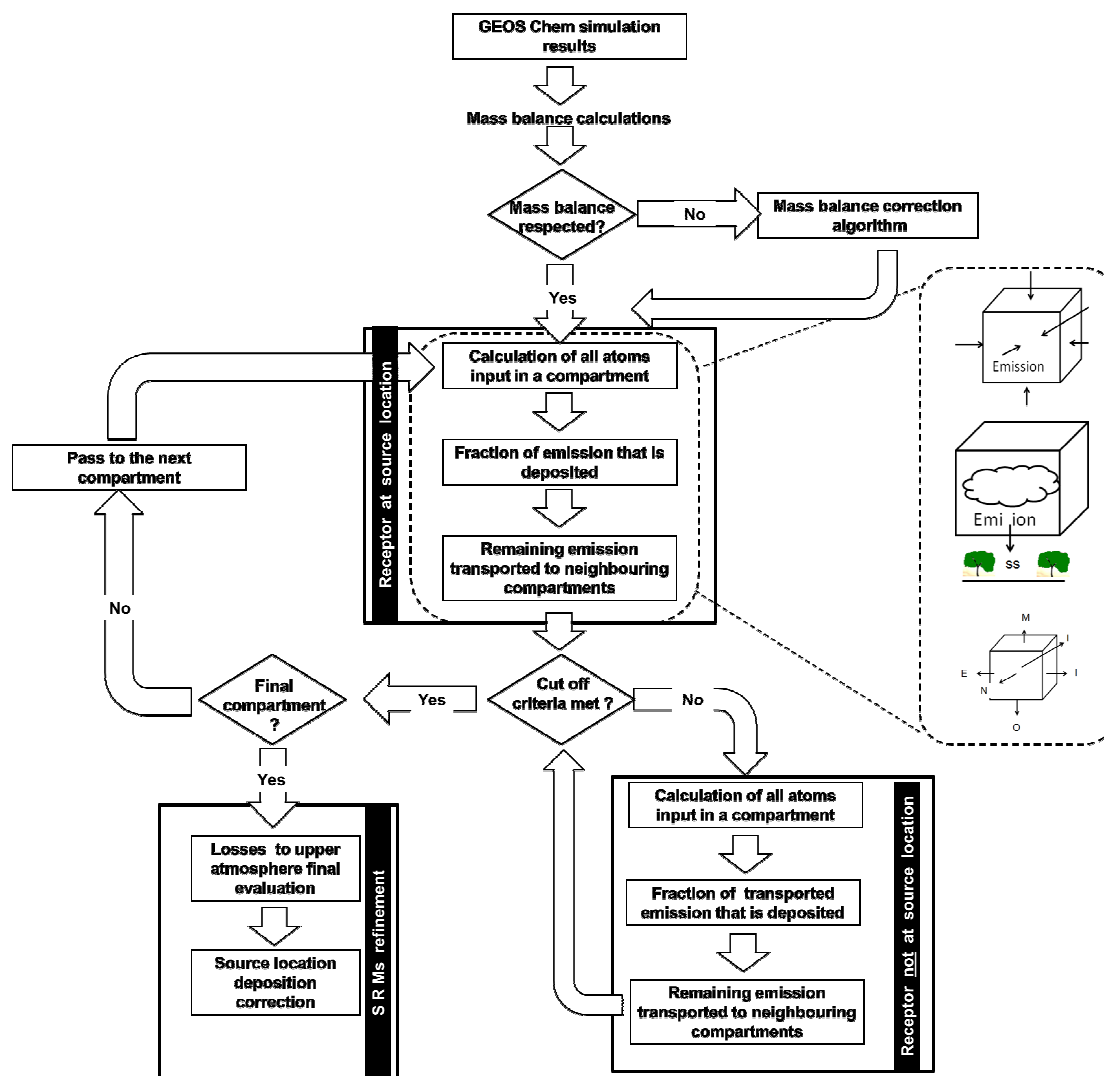


Figure 4-1: Representation of the methodological approach to derive SRMs

For sulfur oxides (SO_2 , SO_4), nitrogen oxides (NO_x , HNO_3) and ammonia (NH_3) airborne emissions, respectively, separate mass balance were performed around each of the 615 888 air compartments as per eq. 4.2.

$$\text{In}_i + \text{Emission}_i + \text{Reevaporation}_i = \text{Out}_i + \text{Total Deposition}_i + \text{Accumulation}_i \quad (4.2)$$

All values are expressed in [kg atom/yr] (i.e. kg of N or S emitted and deposited). As such, by considering species that react together (e.g. NO_x and HNO_3) instead of individual species (e.g., NO_x), eq 1 avoids accounting for production or losses from chemical mechanisms. In_i is the total amount entering air compartment i from all six neighbouring GEOS-Chem compartments (i.e. North, South, East, West, Up and Down); Emission_i is the emission in compartment i ;

Reevaporation_i the passage from a soluble to gaseous state from the below-cloud scavenging by precipitation in compartment *i*; Out_i is the total amount leaving the compartment *i* to the six neighbouring GEOS-Chem compartments; Total Deposition_i is the summation of wet and dry deposition in compartment *i* and Accumulation_i is the difference between the atmospheric amount of the pollutant at the start and end of the considered time period.

While global mass balance ($\sum \text{Emission}_i = \sum \text{Deposition}_i + \sum \text{Accumulation}_i$) was achieved (see Annexe 2), the individual air compartment mass balances were not respected (i.e. the two sides of eq. 4.2 differ for the individual air compartment on a yearly basis). This situation is explained by the poor accuracy of the GEOS-Chem model when evaluating transport fluxes. A 2% error (at a minimum) was reported at every time step (15 minutes) (see Annexe 2). To overcome this limitation and minimize the risk of having transported quantities between air compartments higher than total input and/or having total reconstructed deposition higher than the expected total deposition, a mass balance correction algorithm was included to calculate the SRMs. This algorithm sequentially corrects all air compartment mass balances by adjusting the direction fluxes (i.e. North, South, East, West, Up, Down) of eq. 4.2 In_i or Out_i proportionally to their initial values. Seeing as an output of a certain compartment is an input for another and vice versa, the algorithm uses an iterative approach that lasts until the error converges towards 0. The algorithm implies an increase in transport fluxes which, in turn, increases the number of atoms entering an individual air compartment. Detailed algorithm figures are presented in Annexe 2.

Once the individual air compartment mass balances are respected, it is assumed that the deposition related to the emitting air compartment *i* (Deposition_{i,i}) is proportional to the ratio of the total deposition (wet + dry) of emitting air compartment *i* by a factor expressing the ratio between the direct emission in compartment *i* and the total atoms input in the air compartment, as per eq. 4.3:

$$\text{Deposition}_{i,i} = [\text{Emission}_i / (\text{In}_i + \text{Emission}_i + \text{Reevaporation}_i)] \times \text{Total Deposition}_i \quad (4.3)$$

The remaining emission quantity (i.e. Emission_i – Deposition_{i,i}) from the emitting compartment *i* was then dispersed to all six neighbouring compartments *j* (Transport_{i,j} in eq 4.4), proportionally to the output direction (Out_{i,j}) ratio:

$$\text{Transport}_{i,j} = (\text{Emission}_i - \text{Deposition}_{i,i}) \times \text{Out}_{i,j} / \sum_i \text{Out}_{i,j} \quad (4.4)$$

In a following step, the deposition in the neighbouring compartment j , related to an emission from compartment i ($\text{Deposition}_{i,j}$), is expressed in eq. 4.5:

$$\text{Deposition}_{i,j} = \left[\text{Transport}_{i,j} / (\text{In}_j + \text{Emission}_j + \text{Reevaporation}_j) \right] \times \text{Total Deposition}_j \quad (4.5)$$

Transport from air compartment j to its neighbouring k blocks ($\text{Transport}_{i,j,k}$) is subsequently described in eq. 4.6:

$$\text{Transport}_{i,j,k} = (\text{Transport}_{i,j} - \text{Deposition}_{i,j}) \times \text{Out}_{j,k} / \sum_j \text{Out}_{j,k} \quad (4.6)$$

Calculations last until the last $\text{Transport}_{i,j,k}$ value is below the cut-off value of 0.001% of the emission value. Results leading to the selection of this cut-off value are in Annexe 2. Furthermore, since maximum total deposition was approximately at the 25th altitude level (see Annexe 2), levels 31 to 47 were aggregated into a single level to shorten simulation time.

Once the calculation of the last emission compartment is performed, two-dimensional SRMs are calculated according to eq. 4.7, where s is the source location, r the receptor location and a the altitude air compartments above source location s .

$$\text{SRM}_{s,r} = \text{Deposition}_{s,r} / \sum_a \text{Emission}_{s,a} \quad (4.7)$$

4.3.3.3 Source-receptor matrix refinement

The SRMs that were obtained were subsequently refined in two different steps. First, we implemented a “losses to the atmosphere final evaluation” algorithm to reduce the uncertainty of setting a cut-off criterion of 0.001%. Since the cut-off lowers the reconstructed total deposition that is obtained, a missing deposition (i.e. $\text{Deposition}'_{s,r}$) was modeled proportionally to the SRMs (i.e. eq. 4.8). A figure detailing the algorithm is presented in Annexe 2. The resulting refined SRM ($\text{SRM}_{s,r}^*$) is given by eq. 4.9.

$$\begin{aligned} \text{Deposition}'_{s,r} = & \left(\text{Total Deposition}_r - \sum_s (\text{SRM}_{s,r}) \times \sum_a \text{Emission}_{s,a} \right) \\ & \times \left(\text{Emission}_s - \sum_r \text{SRM}_{s,r} \times \text{Emission}_s \right) \times \text{SRM}_{s,r} \end{aligned} \quad (4.8)$$

$$SRM_{s,r}^* = \left(SRM_{s,r} + \text{Deposition}_{s,r}' / \sum_a \text{Emission}_{s,a} \right) \quad (4.9)$$

We then further refined the SRMs. As eq. 4.3 inherently assumes instantaneous pollutant mixing, the deposition occurring in the emitting compartment (i.e. $\text{Deposition}_{i,i}$) tends to be underestimated. To overcome this limitation, a correction factor is generally introduced (Tsyro, 2001; Singles et al. 1998). For example, Tsyro (Tsyro, 2001) compensated instantaneous mixing by adding a fraction of the emissions that deposit directly within the emitting grid square. Using the same approach (eq. 4.10), we increased the deposition probability within the emitting grid with a local correction deposition factor, based on the work of Barret and Berge (Barret & Berge, 1996) and Tuovinen and Krüger (Tuovinen & Krüger, 1994) (Annexe 2). These local deposition fractions were set at 4% for nitrogen oxides (NO_x , HNO_3), 10 or 15% (depending on ocean/sea or continental source location, respectively) for sulfur oxides (SO_2 , SO_4) and between 19 and 38% for ammonia (NH_3). The long range transport to the remaining $2^\circ \times 2.5^\circ$ receptor location was decreased according to eq. 4.11, where $r(\sim s)$ stands for receptors r not located at the source location $r(s)$.

$$SRM_{s,r(s)}^{**} = SRM_{s,r(s)}^* + \text{Local deposition fraction} \quad (4.10)$$

$$SRM_{s,r(\sim s)}^{**} = SRM_{s,r(\sim s)}^* - \left[\frac{\left(\frac{(SRM_{s,r(\sim s)}^* / \sum SRM_{s,r(\sim s)}^*) \times (\text{Local deposition fraction} \times \sum_a \text{Emission}_{s,a})}{\sum_a \text{Emission}_{s,a}} \right)}{\sum_a \text{Emission}_{s,a}} \right] \quad (4.11)$$

4.3.3.4 Region-specific source-receptor matrix calculation

Since the specific source location of the input and output processes compiled in the LCI phase are seldom known (Finnveden et al., 2009), LCA practitioners often require coarser resolutions to assess the potential impacts of compiled emission inventories. For some emissions, the specific source location may be known; for others, only the continent or country (and possibly region) may remain unidentified (Finnveden et al., 2009). Thus, to meet the needs of the LCA practitioner, we derived fate factors at two additional resolution levels: continental and country SRMs from the previously obtained $2^\circ \times 2.5^\circ$ resolution SRMs. To do so, the latter SRMs were aggregated to the coarser resolutions using an emission-weighted average. Emissions and

depositions are assumed to be evenly distributed within the receptor location. The ArcMap 9.3 geographic information system (GIS) software was used to determine country and continental areas within a grid cell. All emission inventories used in the initial GEOS-Chem simulation were added.

4.3.4 Results

The GEOS-Chem-based SRMs describe the source-receptor relationships of different acidifying chemical species at $2^\circ \times 2.5^\circ$, country and continental level resolutions. Resulting SRMs are available in Annexe 2 or on demand.

Original SRMs (eq. 4.7) captured 87.2, 93.5 and 89.9% of nitrogen oxides (NO_x , HNO_3), sulfur oxides (SO_2 , SO_4), and ammonia (NH_3) total global deposition, respectively. The refined SRMs from eq. 4.9 increased these percentages to 97.5, 98.7 and 95.5%. The missing deposition mostly occurred in oceanic areas (Annexe 2), considered as non-sensitive areas in LCIA (Krewitt et al., 2001). The algorithm has limited repercussions on single fate factors since differences between the approach previously presented and one in which the cut-off was lowered and not completed by the algorithm yielded a 10% difference in most locations (Annexe 2). The local correction refinement modified fate factors not located at the source location (eq.4.11) by an average of 4, 12 and 27% for emissions of nitrogen oxides (NO_x , HNO_3), sulfur oxides (SO_2 , SO_4), and ammonia (NH_3), respectively.

4.3.4.1 Spatially-differentiated atmospheric source-receptor relationships

Figure 4-2 shows the deposition patterns generated by SRMs for emissions of nitrogen oxides (NO_x , HNO_3), sulfur oxides (SO_2 , SO_4), and ammonia (NH_3) in at the receiving $2^\circ \times 2.5^\circ$ grids encompassing the cities of Paris, Beijing and New York. Deposition is always highest near the emission location for all chemical species. The highest fractions are obtained for ammonia (NH_3) emissions (up to 0.52 kg deposited/ kg emitted), followed in decreasing order by sulfur oxides (SO_2 , SO_4) (up to 0.49) and finally nitrogen oxides (NO_x , HNO_3) (up to 0.28) emissions. Spatially-differentiated results show different deposition patterns depending on the emission location and chemical species. It is also important to note that a global model captures transboundary emissions and related deposition locations. For example, 2.4% of ammonia (NH_3) emissions in New York (Figure 4-2, bottom) are deposited in Europe.

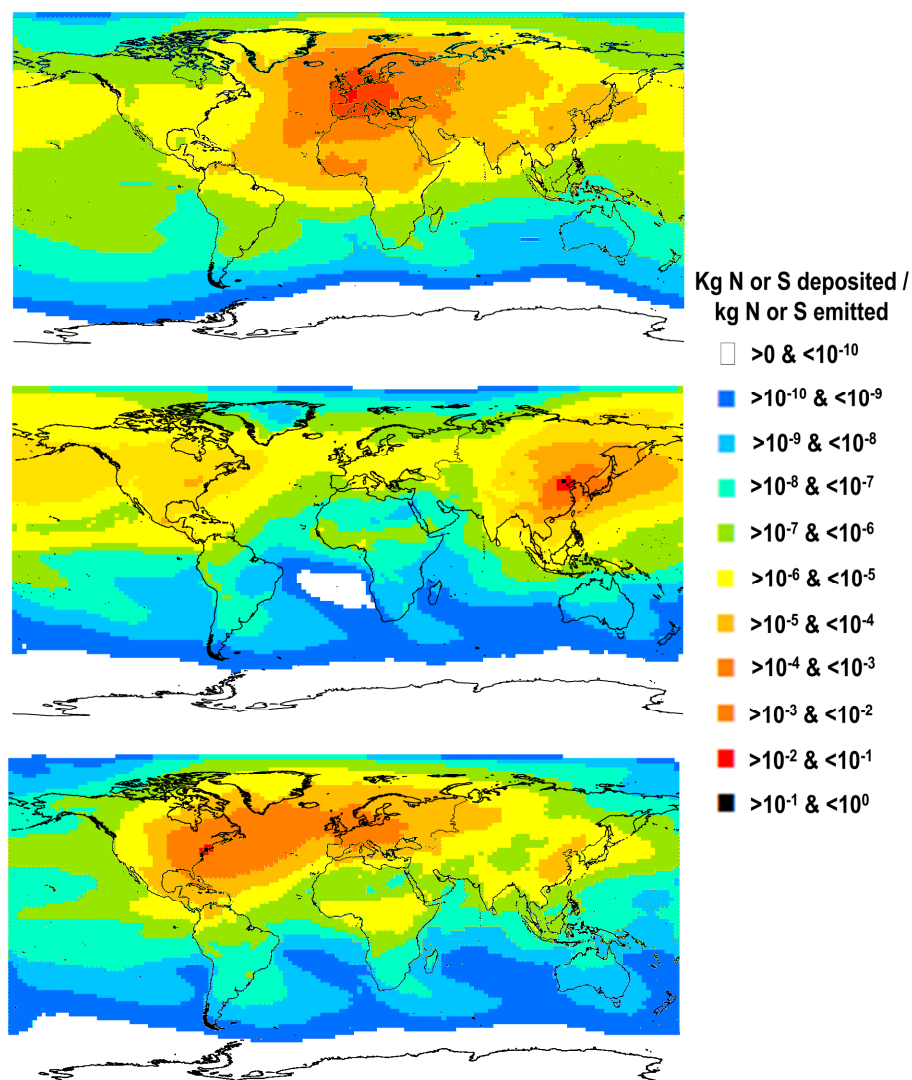


Figure 4-2: SRMs of nitrogen oxides (NO_x, HNO₃) emission in Paris (top), sulfur oxides (SO₂, SO₄) emission in Beijing (middle) and ammonia (NH₃) emission in New York (bottom)

4.3.4.2 Continental-specific source-receptor matrix

Continent-specific source-receptor matrix results are presented in Annexe 2. With the exception of Australia and Oceania, nitrogen oxides (NO_x, HNO₃) and sulfur oxides (SO₂, SO₄) emissions will deposit in a proportion of about 50 to 70% within the same continent, while this proportion rises to 70 to 80% for ammonia (NH₃) emissions. Depending on chemical species, 67 to 75% of the emissions from Oceania will deposit in seas/oceans. These numbers represent the highest proportion of deposition in seas/oceans, followed by Australia (34% to 45%) and other continents (12 to 30%).

4.3.5 Discussion

In this paper, we were able to derive global SRMs related to the atmospheric emissions of nitrogen oxides (NO_x , HNO_3), sulfur oxides (SO_2 , SO_4) and ammonia (NH_3) to support CF development for LCIA acidification and eutrophication impact categories. In impact modeling, LCIA aims for the best estimates (Finnveden et al., 2009) and should not be considered as a substitute for (environmental) risk assessment. In LCIA, a coarse/broad estimation with associated uncertainty is often preferred over no evaluation at all.

The calculated SRMs overcome the current limitation of assessing the life cycle emission inventories of a global economy. Two coarser resolution SRMs were also developed with fate factors for 236 countries and 7 continents. Transboundary deposition, an aspect never considered as of yet in LCIA, is shown to be non-negligible, especially in Europe, since 15, 14, and 7% of nitrogen oxides (NO_x , HNO_3), sulfur oxides (SO_2 , SO_4) and ammonia (NH_3) emissions, respectively, deposit on other continents. The developed SRMs also increase the environmental relevance of LCIA. For example, the deposited fraction from a North American emission, while small, can now generate a potential impact in European countries that have greater ecosystem sensitivity, such as Sweden.

4.3.5.1 Evaluation of the developed SRMs

We evaluated the developed SRMs by comparing them to: i) the SRMs calculated by subtracting two different GEOS-Chem simulations, one including and the other excluding the regional emission inventory for a large region; ii) the results from existing global scale models and iii) the SRMs from the unified European Monitoring and Evaluation Programme (EMEP) model for 2005 (Tarrason et al., 2007), which represents the state-of-the art in LCIA fate factor derivation for Europe (Huijbregts et al., 2000; Potting et al., 1998; Seppälä et al., 2006).

Comparison with GEOS-Chem simulations: Tableau 4.3 provides the fate factor values from developed SRMs and the values that result from shutting off Canada's regional emission inventory in GEOS-Chem over large regions. A comparison based on horizontal $2^\circ \times 2.5^\circ$ grids in North America (Canada and the rest of North America) is also presented in Annexe 2. In Tableau 4.3, the difference between the two sets of Canadian fate factors is less than 10%. For the rest of North America, the relative errors were evaluated at 0%, 8% and 28% for nitrogen oxides (NO_x ,

HNO₃), ammonia (NH₃) and sulfur oxides (SO₂, SO₄) emissions, respectively. In this latter case, there is only a 0.04 [kg S deposited/kg S emitted] difference (in absolute values) between our approach and the GEOS-Chem simulations. It should be noted that 60% of the deposition occurred within the continental scale (i.e. Canada and the rest of North America). The fate factors linking Canadian emissions to depositions in Europe, South America, Asia and Africa are generally within a ± 30 -60% range, while fate factors linking Canada to Australia and Oceania show differences greater than the order of magnitude. This can be explained, in part, by the losses to the atmosphere that add uncertainty in areas far removed from the emission location (Annexe 2). However, one must consider that the overall impact of an emission from region *i* is calculated, in a LCIA context, from the sum of the product between the atmospheric fate factor, the exposure factor and the effect factor. The fate factors linking emission location to far removed areas being several orders of magnitude lower than the ones closest to the emission location, the relative contribution of these far removed areas are somewhat inconsequential to the overall impact calculation.

Tableau 4.3: Fate factors from the simplified SRMs developed as part of this study compared to the SRMs from the two GEOS-Chem simulations in which the Canadian emission inventory was first included and then excluded. Values in parentheses represent a $\pm 50\%$ variation range. The fate factor represents the fraction of a deposition in region *j* (e.g. Canada, rest of North America, South America, Europe, etc.) due to an emission in region *i* (Canada, in this case)*

Receptor region <i>j</i>	Emitting region <i>i</i> : Canada					
	NO _x -HNO ₃		NH ₃		SO ₂ -SO ₄	
	This study (%)	GEOS-Chem (%)	This study (%)	GEOS-Chem (%)	This study (%)	GEOS-Chem (%)
Canada	4.0×10 ⁻¹	4.4×10 ⁻¹ (2.2×10 ⁻¹ -6.7×10 ⁻¹)	5.7×10 ⁻¹	5.7×10 ⁻¹ (2.9×10 ⁻¹ -8.5×10 ⁻¹)	4.7×10 ⁻¹	4.3×10 ⁻¹ (2.1×10 ⁻¹ -6.4×10 ⁻¹)
Rest of North America	2.5×10 ⁻¹	2.5×10 ⁻¹ (1.2×10 ⁻¹ -3.8×10 ⁻¹)	1.4×10 ⁻¹	1.3×10 ⁻¹ (6.5×10 ⁻² -2.0×10 ⁻¹)	1.8×10 ⁻¹	1.4×10 ⁻¹ (6.9×10 ⁻² -2.1×10 ⁻¹)
South America	4.0×10 ⁻⁴	7.0×10 ⁻⁴ (4.0×10 ⁻⁴ -1.1×10 ⁻³)	2.0×10 ⁻⁴	6.0×10 ⁻⁴ (3.0×10 ⁻⁴ -9.0×10 ⁻⁴)	6.0×10 ⁻⁵	1.2×10 ⁻⁴ (6.0×10 ⁻⁵ -1.8×10 ⁻⁴)
Europe	1.2×10 ⁻²	1.2×10 ⁻² (6.0×10 ⁻³ -1.9×10 ⁻²)	6.0×10 ⁻³	7.0×10 ⁻³ (4.0×10 ⁻³ -1.1×10 ⁻²)	7.0×10 ⁻³	3.9×10 ⁻³ (1.9×10 ⁻³ -5.8×10 ⁻³)
Asia	1.1×10 ⁻²	2.0×10 ⁻² (1.0×10 ⁻² -3.0×10 ⁻²)	3.4×10 ⁻³	1.0×10 ⁻² (5.0×10 ⁻³ -1.5×10 ⁻²)	2.9×10 ⁻¹	1.2×10 ⁻² (6.0×10 ⁻³ -1.8×10 ⁻²)
Africa	1.3×10 ⁻³	5.0×10 ⁻³ (3.0×10 ⁻³ -8.0×10 ⁻³)	2.0×10 ⁻⁴	2.5×10 ⁻³ (1.2×10 ⁻³ -4.0×10 ⁻³)	4.0×10 ⁻⁴	7.0×10 ⁻⁴ (3.0×10 ⁻⁴ -9.0×10 ⁻⁴)
Australia	7.7×10 ⁻⁶	1.1×10 ⁻³ (5.0×10 ⁻⁴ -1.6×10 ⁻³)	1.8×10 ⁻⁶	8.0×10 ⁻⁵ (4.0×10 ⁻⁵ -1.0×10 ⁻³)	5.0×10 ⁻⁷	7.0×10 ⁻⁵ (4.0×10 ⁻⁵ -1.0×10 ⁻⁴)
Oceania	4.2×10 ⁻⁶	3.0×10 ⁻⁵ (1.0×10 ⁻⁵ -7.0×10 ⁻⁵)	5.4×10 ⁻⁸	4.0×10 ⁻⁶ (1.0×10 ⁻⁶ -6.0×10 ⁻⁶)	2.0×10 ⁻⁷	6.0×10 ⁻⁵ (3.0×10 ⁻⁵ -9.0×10 ⁻⁵)

*Sum of fate factors does not equal 100% due to deposition in seas/oceans or mass still in the atmosphere.

Comparison with the results from other global scale models: In Sanderson et al. (Sanderson et al., 2008), continental NO_x SRMs were obtained based on the average results from fifteen different global atmospheric models. Comparisons between our SRMs and those in Sanderson et al. are presented in Tableau 4.4.

Tableau 4.4: NO_x fate factors from SRMs in this study compared to the fate factors from an average over fifteen global scale models in Sanderson et al. (2008). Values in parentheses represent the fate factor variability range. The range was calculated with the standard deviation of the fifteen atmospheric models in Sanderson et al. with a normal distribution. Our SRMs were recalculated to match the regions in Sanderson et al.*

Receptor region j	Emitting region i				
		Europe [10W to 50E 25N to 65N]	North America [125W to 60W 15N to 55N]	South Asia [50E to 95E 5N to 35N]	East Asia [95E to 160E 15N to 50N]
Europe	This study	64.4	1.6	0.9	0.05
	Sanderson et al	76.2 (49- 100)	2.1 (0 to 4.9)	1.3 (0 to 5.29)	0.5 (0 to 1.7)
North America	This study	0.1	74.5	0.9	0.6
	Sanderson et al	0.7 (0 to 3.1)	82.0 (63 to 100)	0.8 (0 to 3.33)	1.3 (0 to 4.3)
South Asia	This study	1.4	0.1	51.8	2.3
	Sanderson et al	2.2 (0 to 7.4)	0.5 (0 to 1.73)	80.6 (51 to 100)	1.0 (0 to 2.5)
East Asia	This study	1.7	0.2	16.2	73.0
	Sanderson et al	2.4 (0 to 8.2)	0.9 (0 to 2.76)	6.4 (0 to 17.0)	88.1 (68 to 100)

*The sum of the fate factors does not total 100% due to deposition on other continents, seas/oceans or mass still in the atmosphere.

Comparison with the unified EMEP model for Europe: We compared the calculated country-specific SRMs (with and without the local deposition factor) from 13 European countries to the ones from the unified EMEP model (see Annexe 2). It was observed that 76, 71 and 67% of developed nitrogen oxides (NO_x, HNO₃), sulfur oxides (SO₂, SO₄) and ammonia (NH₃)’s fate factors (with local deposition factor) were respectively located within a $\pm 50\%$ interval of the unified EMEP model fate factors. Fate factors outside this interval mostly occurred with low (<1%) fate factors. The maximum deviation for large countries at the source location (between 18 and 25% for France, Germany, Spain, United Kingdom) is lower than the maximum deviation for smaller countries (between 36 and 45% for Denmark, Norway, Belgium, Netherlands and Czech

Republic). Differences in maximum deviation between large and small countries are mainly attributed to resizing errors when calculating fate factors from the $2^{\circ} \times 2.5^{\circ}$ grid resolution into country resolutions. Discrepancies between model results were expected: comparisons between EMEP modeled depositions and field measurements are within $\pm 30\%$ (Tarrason et al., 2007), while less than 60% of GEOS-Chem modeled deposition are within a $\pm 50\%$ range of field measurements (Dentener, 2007). The main modeling differences between GEOS-Chem and the EMEP model are presented in Annexe 2.

Conclusion: Overall, these three comparisons showed that the SRMs developed for this study accurately mimic the results of the original GEOS-Chem model and fall within the range of existing global scale models. The added value of our work is a high resolution evaluation without the need to rerun the underlying tropospheric model, which requires time-prohibitive computational capacities. Furthermore, the developed SRMs also correlate well with the outcomes of the unified EMEP model for Europe, which currently represents the state-of-the-art in fate modeling in LCIA. However, global scale fate factors constitute the added value of our work for LCIA (EMEP provides fate factors at the European scale only).

4.3.5.2 Limitations

Meteorological changes have a rather important effect on long-range transport and source-receptor analyses (Benedictow et al., 2009). The proposed SRMs were derived for a single year of reference due to the lack of meteorological data covering multiple years (i.e. GEOS 5), thus making it impossible to generate averages over several years (5 to 10 years) to compensate for temporal variability. However, despite this variability, the year 2005 is considered to be representative of the average from 1961 to 1990, according to the National Oceanic and Atmospheric Administration's National Climatic Data Center (NOAA National Climatic Data Center, 2005).

Furthermore, in some cases, seasonal or monthly SRMs would be considered more appropriate than year-long SRMs. Since outputs were obtained from smaller time-step intervals (every week), such SRMs could be calculated. However, since LCA does not generally provide information on when emissions occur, the use of an annual average is in line with the scope of the study.

Finally, after running GEOS-Chem for a one-year simulation, we observed an accumulation of chemical species in the air compartments corresponding to 11%, 4% and <1% of total nitrogen

oxides (NO_x , HNO_3), sulfur oxides (SO_2 , SO_4), and ammonia (NH_3) emissions, respectively. For LCIA applications, one must address this specific issue and calculate where the accumulated mass will be distributed over an infinite (or long) time period. In this study, we recommend treating the accumulation term as a quantity that ultimately travels outside the modeling altitude boundaries (the stratosphere), since accumulation is mostly concentrated in the upper levels of the atmosphere where no deposition occurs (Annexe 2). This assumption has limited repercussions, however, since grid SRMs would vary by a maximum relative error of 0.02, 2.3 and 0.3% for nitrogen oxides (NO_x , HNO_3), sulfur oxides (SO_2 , SO_4), and ammonia (NH_3) emissions, respectively, if the accumulation term totally deposited (following existing SRMs) instead.

4.3.6 Conclusion

This study provides SRMs with fate factors for the atmospheric emissions of nitrogen oxides (NO_x , HNO_3), sulfur oxides (SO_2 , SO_4), and ammonia (NH_3) to support the development of spatially-differentiated characterization factors at the global level for the acidification and eutrophication impact categories. These fate factors were derived at a relatively high spatial resolution and account for transboundary emissions outside the standard continental boundaries considered in current LCIA models. Regardless of the remaining uncertainty and limitations, particularly the mass balance correction algorithm, the evaluation of pollutant losses to the atmosphere and the local deposition correction, the proposed approach opens the door to evaluating the regional life cycle inventories of a global economy. Finally, the SRMs outlined in this paper facilitate further modeling developments without needing to run the underlying tropospheric model, which requires a resource-intensive learning curve and time-prohibitive computational capacities.

Acknowledgements

Special thanks to Gabriel Morin, Claude Belley, Bob Yantosca and Mourad Heniche for their expertise and especially their patience.

The CIRAIG would also like to thank its industrial partners for their financial support: ArcelorMittal, Bell Canada, Cascades, Eco Entreprises Québec, RECYC-QUÉBEC, Groupe

EDF, Gaz de France, Hydro- Québec, Johnson & Johnson, Mouvement des caisses Desjardins, Rio Tinto Alcan, RONA, SAQ, Total and Veolia Environment.

The research was partly funded by the European Commission under the Seventh Framework Programme on Environment (ENV.2009.3.3.2.1: LCIMPACT - Life Cycle Impact assessment methods for improved sustainability characterization of technologies).

CHAPITRE 5 DÉVELOPPEMENT DE FACTEURS DE SENSIBILITÉ DES MILIEUX TERRESTRES RÉGIONALISÉS À L'ÉCHELLE MONDIALE

Cette section est centrée autour du second manuscrit intitulé « *Life cycle impact assessment of terrestrial acidification : modeling spatially explicit soil sensitivity at the global scale* » (section 5.2) publié dans la revue Environmental Science & Technology (soumis le 5 avril 2012, accepté le 10 juillet 2012).

5.1 Présentation du second manuscrit et lien avec le premier manuscrit

Le premier manuscrit évaluait le facteur de devenir atmosphérique; facteur nécessaire au calcul des FCs de l'acidification terrestre et aquatique. Le second manuscrit élabore, quant à lui, une approche permettant de calculer des facteurs de sensibilité des milieux terrestres régionalisés à l'échelle mondiale; nécessaire au calcul des FCs de l'acidification terrestre. L'approche développée dans ce manuscrit évalue les réactions physico-chimiques des sols suite à la déposition atmosphérique. Cette approche est basée sur le modèle géophysique, opérant en régime permanent, PROFILE qui permet de quantifier le changement d'indicateurs de sols suite à un changement « marginal » de la déposition atmosphérique. Les indicateurs de sols évalués sont le ratio des cations de bases (BC; Ca^{2+} , K^{+} , Mg^{2+}) et de l'aluminium (BC/Al), le ratio du calcium et de l'aluminium (Al/Ca), du pH et de la concentration d'aluminium (Al). Pour ce faire, il fut nécessaire d'élaborer une base de données des paramètres de sols régionalisés spécifiques au modèle PROFILE. L'incertitude inhérente aux facteurs de sensibilité développés a également été évaluée suite à une analyse Monte Carlo.

5.2 “Life cycle impact assessment of terrestrial acidification : modeling spatially explicit soil sensitivity at the global scale”

5.2.1 Abstract

This paper presents a novel life cycle impact assessment (LCIA) approach to derive spatially explicit soil sensitivity indicators for terrestrial acidification. This global approach is compatible with a subsequent damage assessment, making it possible to consistently link the developed

midpoint indicators with a later endpoint assessment along the cause effect chain a prerequisite in LCIA. Four different soil chemical indicators were preselected to evaluate sensitivity factors (SFs) for regional receiving environments at the global scale, namely the base cations to aluminum ratio, aluminum to calcium ratio, pH, and aluminum concentration. These chemical indicators were assessed using the PROFILE geochemical steady-state soil model and a global data set of regional soil parameters developed specifically for this study. Results showed that the most sensitive regions (i.e., where SF is maximized) are in Canada, northern Europe, the Amazon, central Africa, and East and Southeast Asia. However, the approach is not bereft of uncertainty. Indeed, a Monte Carlo analysis showed that input parameter variability may induce SF variations of up to over 6 orders of magnitude for certain chemical indicators. These findings improve current practices and enable the development of regional characterization models to assess regional life cycle inventories in a global economy.

5.2.2 Introduction

Life cycle assessment (LCA) aims to compile and evaluate the inputs, outputs and potential environmental impacts of a product or service throughout its entire life cycle, from material extraction to end-of-life (Udo de Haes et al., 2002). LCAs are comprised of four different steps: the goal and scope, the life cycle inventory (LCI), which quantifies the inputs and outputs of a product (e.g. kg of emitted pollutants), the life cycle impact assessment (LCIA) and the interpretation (Udo de Haes et al., 2002). In LCIA, the potential environmental impacts of a given life cycle emission inventory are assessed for a specific impact category (e.g. acidification, eutrophication, ecotoxicity) with characterization factors (CFs). CFs result from a characterization model—a mathematical representation of the cause-effect chain that links the emission inventory to the potential impact of a given impact category (e.g. human health, biodiversity loss). Following the general framework for emitted atmospheric pollutants (Udo de Haes et al., 2002), a CF for terrestrial acidification can be expressed as a function of an atmospheric fate factor, a receiving environment sensitivity factor and an effect factor. The atmospheric fate factor models the relationship between emission and deposition locations. The receiving environment sensitivity factor evaluates the ability of the receiving environment to withstand acidic deposition due to a number of buffer reactions that are largely determined by the properties and environmental conditions of the receiving environment (Ulrich, 1985). The effect

factor assesses the change in a given endpoint indicator such as the *potentially not occurring fraction of plant species* (PNOF), indicative of biodiversity losses as a function of the changes in the quality of the receiving environment due to acid deposits. CFs can either be derived at a midpoint or an endpoint level (Udo de Haes et al., 2002). Midpoint indicators can be set anywhere along the cause-effect chain, linking, for example, emissions to the deposition of acidifying substances or change in receiving environment sensitivity, while endpoint indicators link the emissions to the consequences of acidification on the ecosystem (i.e. biodiversity loss). The endpoint level provides information that directly matters to society (Udo de Haes et al., 2002).

Historically, LCIA relied on generic CFs to evaluate impacts. These were obtained by modeling the cause-effect chain in a standardized or generic *unit world* with *typical* pollutant fate, sensitivity and effect patterns (Potting & Hauschild, 2006). However, in the late 1990s, the development of CFs shifted, incorporating country or continent characteristics (e.g. atmospheric weather conditions, vegetation) into CF modeling since it was shown that source location and surrounding conditions strongly influenced impact assessments and, thus, had serious implications for the validity of the conclusions of a site-generic LCIA (Potting & Hauschild, 2006). These spatially-explicit CFs were therefore representative of a particular region of interest (i.e. Europe, Canada, United States or Japan). However, there is currently no LCIA methodology that provides spatially-explicit CFs for terrestrial acidification at a global scale. Consequently, current CFs do not allow for discrimination between an emission in Europe, for example, from an emission in North America. Moreover, in contrast with LCA principles, current modeling practices do not account for transboundary emissions outside the considered geographical context. While they are likely to be relatively small, the transboundary emissions may still deposit in areas with limited buffer capacity (i.e. sensitive areas), creating high acidifying potential impacts. One of the major obstacles to expanding the scope to a regionalized worldwide scale is the difficulty in modeling the receiving environment's sensitivity factor (European Commission-Joint Research Centre, 2011).

Current LCIA midpoint methodologies often rely on critical load (CL) approaches to evaluate the sensitivity of the receiving environment (Huijbregts et al., 2000; Potting et al., 1998; Seppälä et al., 2006). CL is a metric developed to “quantitatively estimate an exposure to one or more pollutants below which significant harmful effects on specified sensitive elements of the

environment do not occur, according to present knowledge” (Posch, 2004). While efforts outside LCIA were invested to map global scale CLs (Bouwman & al, 2002; Kuylensstierna et al., 2001) and link empirical critical load exceedance of N for certain (mostly European) ecosystems to biodiversity losses (Bobbink, 2004), the debate in LCIA as to whether or not it is appropriate to use CL approaches as an intermediary modeling step to endpoint indicators is still open. Indeed CLs are modeled on a side track of the cause-effect chain to the damages (European Commission-Joint Research Centre, 2011). To model the link between midpoint and endpoint indicators, we see two possibilities: i) develop multiple dose-response curves for numerous ecosystems around the globe for both S and N deposits, linking existing global scale critical load exceedance methods to biodiversity losses or ii) move from CL to an indicator that evaluates the receiving environment’s sensitivity, like the ones used in current endpoint assessment. In this paper, we opted for the latter. Endpoint assessment currently relies on geochemical dynamic modeling (Goedkoop & Spriensma, 2001; van Zelm et al., 2007) to predict changes in specific soil indicators (e.g. pH, base saturation) related to atmospheric deposits and soil-specific physico-chemical properties. These changes in soil indicators were then linked to known vegetation models, such as the MOVE model (Latour & Reiling, 1993), or to the dose-response curves of different vascular plant species (Bobbink, 2004). However, dynamic models require a high number of soil-specific physico-chemical parameters that are not available outside certain regions such as Europe (Posch et al., 2003). This limitation made certain regional LCIA methods such as the North American TRACI (Bare et al., 2002) method stop modeling the cause-effect chain at the deposition of acidifying substances on the receiving environment (atmospheric fate factor), disregarding the subsequent soil sensitivity and effect factors.

This paper aims to expand current LCIA modeling capabilities by assessing the sensitivity of receiving environments caused by acidifying emissions in a way that is i) compatible with a further step to model biodiversity damages and ii) capable of addressing regional variability at a global scale. This approach will estimate changes in soil parameters as a function of atmospheric acid deposition. The PROFILE soil model was therefore selected, leading to the creation of a database of input parameters with global coverage to derive receiving environment sensitivity factors. Overall, this research seeks to support the development of characterization models and indicators capable of assessing the variability of regional life cycle inventories within a global economy and, by the same token, enhance the environmental relevance of LCA results.

5.2.3 Method

5.2.3.1 Assessment framework

The CF for acidification [$\text{ha} \times \text{kg}_{\text{emitted}}^{-1} \times \text{yr}$] is given per eq. (5.1), where FF is the atmospheric fate factor [$\text{keq}_{\text{deposited}} \times \text{ha}^{-1} \times \text{yr}^{-1} \times \text{kg}_{\text{emitted}}^{-1} \times \text{yr}$], SF the receiving environment sensitivity factor [sensitivity indicator $\times \text{ha} \times \text{keq}_{\text{deposited}}^{-1} \times \text{ha} \times \text{yr}$] and EF the effect factor [sensitivity indicator⁻¹]; i stands for the emission location, j for the receiving environment location and p for the specific considered pollutant.

$$CF_{i,p} = \sum_j FF_{i,j,p} \times SF_{j,p} \times EF_j = \sum_j \left(\frac{dDep_{j,p}}{dEm_{i,p}} \times \left(\frac{\partial Indicator_j}{\partial Dep_{j,p}} \times A_j \right) \times \frac{dPNOF_j}{dIndicator_j} \right) \quad (5.1)$$

Where $Em_{i,p}$ [$\text{kg}_{\text{emitted}} \times \text{yr}^{-1}$] stands for the emission of pollutant p at source location i , $Dep_{j,p}$ [$\text{keq}_{\text{deposited}} \times \text{ha}^{-1} \times \text{yr}^{-1}$] the deposition related $Em_{i,p}$ in receiving environment j , A_j [ha] is the area of the receiving environment j , $Indicator_j$ the soil chemical indicator and $PNOF_j$ [dimensionless] is the *potentially not occurring fraction of plant species* for receiving j .

This work focused on calculating SFs, which link a pollutant's deposition in a receiving environment to its ability to withstand its effects and express the change in given soil chemical indicator following a marginal change in deposition as a linear function. This marginal change approach assumes that “an additional amount of a certain stressor introduces very small changes on top of a *ceteris paribus* background situation” (Huijbregts et al., 2011). This is a common LCIA practice to model sophisticated non-linear environmental mechanisms. We considered a 10% variation in emission-deposition, as suggested by numerous past studies to calculate acidification CFs (Huijbregts et al., 2000; Krewitt et al., 2001; Potting et al., 1998; Seppälä et al., 2006; van Zelm et al., 2007).

SFs were calculated for N emissions from $\text{NO}_x\text{-HNO}_3$ or from NH_3 and for S emissions from $\text{SO}_2\text{-SO}_4$, the greatest contributors to terrestrial acidification (Hauschild & Potting, 2003), and for four different indicators, relying on the ones used to calculate European CLs (Posch et al., 1999): the base cations (BC, i.e., Ca^{2+} , K^+ , Mg^{2+}) to aluminum (Al) ratio (i.e. BC/Al), the aluminum to calcium (Ca) ratio (i.e. Al/Ca), soil solution pH and dissolved Al concentration. The SF for the BC/Al and pH indicators were calculated as Al/BC and H^+ concentration ($\text{pH} = -\log_{10}[\text{H}^+]$). As such, an increase in the chemical indicator will be translated into an increased SF. Otherwise,

further acid deposits lower both BC/Al and pH. The units for the SFs are thus $[\text{ha} \times \text{keq}_{\text{deposited}}^{-1} \times \text{ha} \times \text{yr}]$, $[\text{ha} \times \text{keq}_{\text{deposited}}^{-1} \times \text{ha} \times \text{yr}]$, $[\text{mol H}^+ \text{L}^{-1} \times \text{ha} \times \text{keq}_{\text{deposited}}^{-1} \times \text{ha} \times \text{yr}]$ and $[\mu\text{mol Al} \times \text{L}^{-1} \times \text{ha} \times \text{keq}_{\text{deposited}}^{-1} \times \text{ha} \times \text{yr}]$ for the BC/Al, Al/Ca, pH and Al indicators, respectively.

A receiving environment area (A_j) was defined as an intersection between an atmospheric grid and areas with different soil parameters within this grid.

5.2.3.2 Soil indicator calculation

PROFILE is a geochemical steady-state model that uses the atmospheric deposition levels of acidifying and base cations substances, weather characteristics and soil parameters to predict indicator values for the sensitivity of the receiving environment. The model is based on the mass balance calculations of different soil layers. From input parameters, it reproduces the soil layer solution composition as defined by cation exchange reactions involving H, Al and BC, silicate weathering as well as biological processes. The weathering rates of ions are calculated from independent geophysical properties, making it possible to account for spatial differentiation (Warfvinge & Sverdrup, 1992).

In total, 99 515 receiving environments were simulated. PROFILE outputs are given for each soil layer. Following the ISRIC-Wise database (v 1.1) (Batjes, 2006), five soil layers of 20 cm each were used. Averaged indicator values were obtained using the roots distribution fraction as a function of terrestrial biomes from Jackson et al (Jackson et al., 1996) as weighting factors (Annexe 3). In the specific cases of the “montane grasslands and shrublands”, “flooded grasslands and savannas” and “mangrove” biomes, where roots distribution fractions were unavailable, the weighting factors of each soil layer were considered equal. If the PROFILE simulation did not converge, the background and varied deposition scenarios from the nearest receiving environments were used as proxies, since they share most of the same input parameters.

PROFILE input parameters were categorized as atmospheric deposition, weather characteristics or soil parameters (Tableau 5.1). Acid deposits were assessed with the GEOS-Chem (Bey et al., 2001) tropospheric global scale model for the reference year 2005, which is representative of the average from 1961 to 1990 according to the National Climatic Data Center of the National Oceanic and Atmospheric Administration (NOAA National Climatic Data Center, 2005). All values were expressed in $[\text{kg atom yr}^{-1}]$ (i.e. kg of N or S deposited). The change from the given

atomic unit to the [keq ha⁻¹ yr⁻¹] unit was made through the molecular weight and valence of the atomic atoms (1 mol of S = 2 eq, 1 mol of N=1 eq and 1 mol of BC=2 eq [9]).

It should also be noted that the same relationships, regardless of soil type, linking Al dissolution constant (i.e. K_{Al}), N and BC uptake efficiency, and CO₂ pressure to soil depth were used. While it would have been preferable to distinguish these parameters based on soil types (which have distinct pedogenetical developments with distinct root distributions, organic matter content and chemical makeup), the limited number of values made this distinction impossible. The values found for these parameters did, however, show that parameter variability within a soil order (a soil type classification) was higher than variability between soil orders (see Annexe 3), thus making the assumption more acceptable. Tableau 5.1 lists the input parameters and underlying datasets/hypotheses/estimations. Further details on dataset generation are presented in Annexe 3.

Tableau 5.1: PROFILE* parameters

parameters	description	spatial resolution	average spatial variations	ref
Atmospheric Deposition [keq/ha/yr]				
acidifying substances wet and dry deposition	deposition from GEOS- Chem for 2005	2° × 2.5°	-	24
chloride, sodium, and magnesium deposition	percentage of sea-salt deposition from GEOS-Chem for 2005	2° × 2.5°	-	see the SI
calcium deposition	10% of soil dust deposition	4° × 5°	-	see the SI
potassium deposition	2% of soil dust deposition	4° × 5°	-	see the SI
Weather Characteristics				
precipitation [m]	WorldClim-Global climate database	10 arc minutes	±10% (within an atmospheric grid)	26
temperature [°C]	WorldClim-Global climate database	10 arc minutes	±10% (within an atmospheric grid)	26
Soil Parameter				
layer height [cm]	set to follow the ISRIC-Wise database	5 × 5 arc minutes	-	22
soil texture [% sand, silt, clay]	ISRIC-Wise database	5 × 5 arc minutes	±30% (soil types)	22
soil–water content [m ³ water/m ³ soil]	Maximum water content is a function of soil texture. Water content was assumed to be 80% of field capacity.	5 × 5 arc minutes	Min:PWP ^b Max:FC ^c	27
soil bulk density [kg/m ³]	ISRIC-Wise database	5 × 5 arc minutes	±25% (soil types)	22
water entering/leaving layer(%)	ISRIC-Wise database FAO qualitative drainage class for which a value of <i>absorbed water percentage</i> was attributed	5 × 5 arc minutes	-	21,22,28–32
surface area [m ³ /m ³]	calculate in PROFILE	-	-	21
runoff [m]	calculate in PROFILE	-	-	21
net uptake [keq/ha/yr]	Worldwide vegetation types map was associated with net uptake values from Duan et al.	0.5° × 0.5°	0 to –100%	33,34
dissolved organic carbon (DOC) [mg/L]	calculated from the total organic carbon (TOC) – dry bulk, density, water content, and typical values of DOC from literature sources	5 × 5 arc minutes	TOC: –70% to +50% (soil types)	21,22,28–32
mineralogy [% minerals]	A global soil order classification map was associated with average mineralogy which was obtained from sampling data.	-	see the SI	35,36
Al _{eq} [unitless]	default value: 3	-	-	21
log K _{gibb} [(mol/L) ⁻²]	soil layer default values	-	see the SI	21,28–32
CO ₂ pressure [atm]	soil layer default values	-	see the SI	21,28–32
BC/N uptake efficiency [unitless]	soil layer default values	-	see the SI	21,28–32
N-immobilization and denitrification [keq/ha/yr]	followed the method of Bouwan et al.	-	-	9

^aAdditional parameters such as litter fall, canopy exchange, and net mineralization were omitted (see the SI). ^bPWP: Permanent wilting point. ^cFC: Field capacity. ^d- not applicable.

5.2.3.3 Uncertainty due to parameter variability

There is uncertainty related to each of the model input parameters due to spatial variations (see Tableau 5.1). These variations play an important role in the accuracy of the soil chemical indicators and, as a result, of the SF values. To ascertain the influence of this spatial variability on the SF values, three random atmospheric grids containing a total of 12 receiving environments were selected and tested following a Monte Carlo procedure similar to the one used by Jönsson et al. (Jönsson, Warfvinge, & Sverdrup, 1995). The weather characteristics and soil parameter inputs were given 1 000 different random values (not Latin hypercube) from uniform distributions sampling defined by the spatial variation boundaries in Tableau 5.1 (the only exception being mineralogy, which instead used a normal distribution). Details are provided in Annexe 3. The parameters were all simultaneously varied. The 1 000 soil chemical indicators that were obtained were then used to recalculate SFs. The SFs that were obtained were then compared with the original (best estimate) SF values.

5.2.4 Results

5.2.4.1 Simulated indicator results

Tableau 5.2 provides statistical results on SFs. On average, SFs are higher for S-related (from SO_2 - SO_4 emissions) deposition than N-related (from NH_3 or NO_x - HNO_3) deposition by a factor of 1.3 to 22.7 (depending on the soil chemical indicator). While the median numerical value differs greatly from the average, SFs from S (from SO_2 - SO_4 emissions) deposition are still higher than those from N (from NH_3 or NO_x - HNO_3) deposits. The BC/Al- and especially the Al/Ca-based SFs are particularly unstable in regions where the soil's calcium and/or base cations were totally consumed, making the ratios reach infinity in background and/or marginal change situations.

Tableau 5.2: Statistical data on SF-based indicators (BC/Al [ha keq-1 ha yr], Al/Ca [ha keq-1 ha yr], pH [mol H⁺ L⁻¹ ha keq-1 ha yr] and Al [μmol Al L⁻¹ ha keq-1 ha yr] as a function of pollutants and soil chemical indicators

soil indicators	average	median	min	max	10th percentile	90th percentile
N from NO_x-HNO₃ Emissions						
BC/Al	1.32×10^9	1.21×10^{-2}	-Inf	1.08×10^{14}	0	1.57×10^3
Al/Ca	7.55×10^{11}	7.52×10^{-4}	-Inf	4.04×10^{16}	0	6.37×10^2
pH	0.91	3.1×10^{-3}	0	7.93×10^2	0	1.31
Al	3.62×10^{-5}	5.45	0	1.28×10^3	0	2.50×10^5
N from NH₃ Emissions						
BCA1	1.26×10^9	1.94×10^{-2}	-Inf	1.09×10^{14}	0	2.35×10^3
Al/C _a	7.52×10^{11}	1.25×10^{-3}	-Inf	2.77×10^{16}	0	9.70×10^2
pH	1.46	4.70×10^{-3}	0	8.61×10^2	0	2.02
Al	5.51×10^5	8.24	0	1.86×10^9	0	3.92×10^5
S from SO₂-SO₄ Emissions						
BC/Al	2.86×10^{10}	5.5×10^{-2}	-Inf	2.68×10^{10}	2.64×10^{-7}	6.60×10^3
Al/Ca	1.58×10^{12}	3.0×10^{-3}	-Inf	9.68×10^{16}	0	1.61×10^3
pH	2.31	1.1×10^{-2}	0	1.28×10^3	1.69×10^{-7}	3.22
Al	7.35×10^5	20.2	0	1.15×10^9	1.93×10^{-4}	5.90×10^5

^aInf = infinity.

Figure 5-1 presents the worldwide BC/Al-, Al/Ca-, pH- and Al-based SFs that were obtained for yearly emissions of S from SO₂-SO₄ emissions. Similar results for N emissions from NO_x-HNO₃ and NH₃ are provided separately in Annexe 3. Results from the BC/Al-, pH- and Al-based SFs suggest that the most sensitive regions (i.e. where SF is maximized) are in Canada, northern Europe, the Amazon, central Africa and East and Southeast Asia.

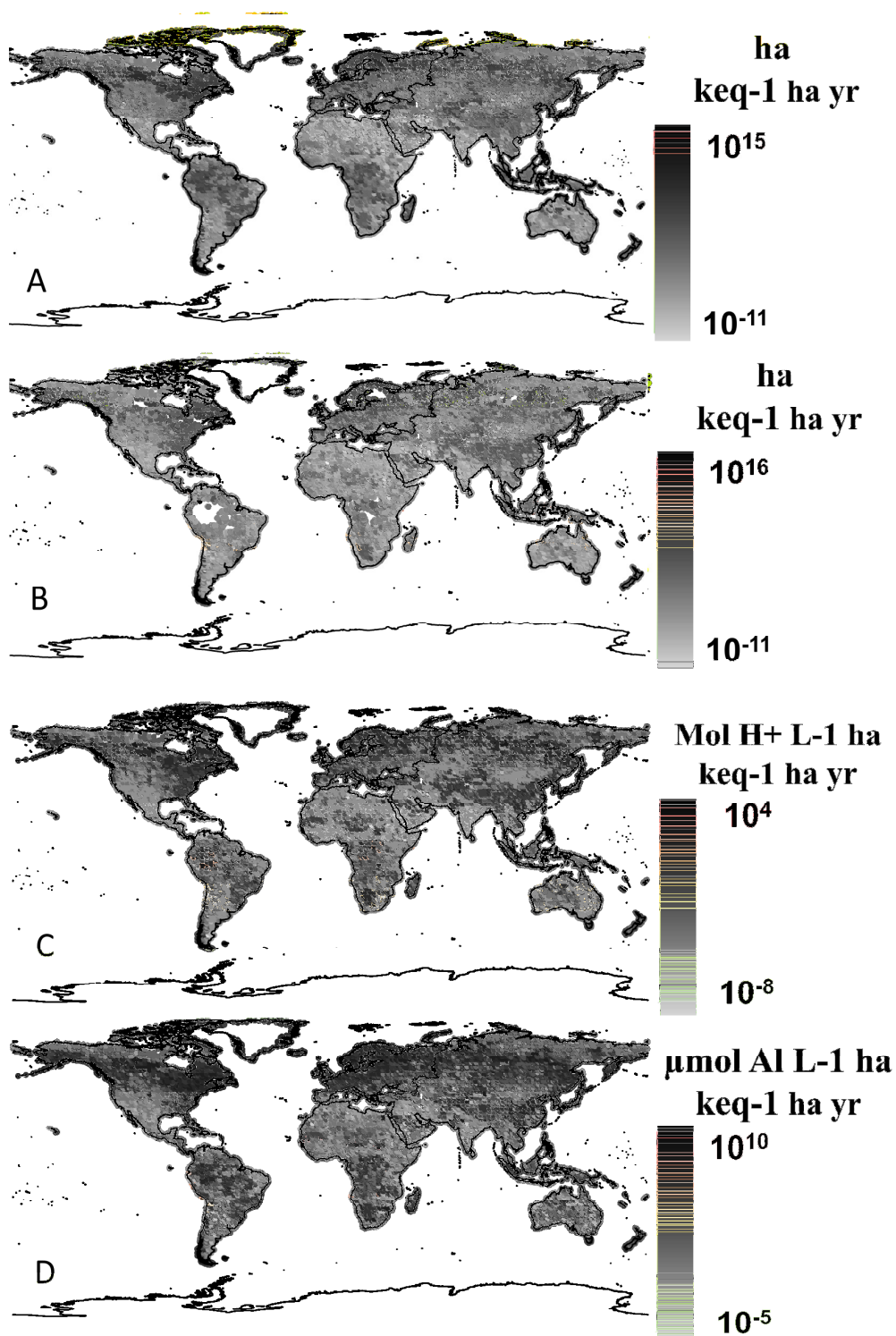


Figure 5-1: Worldwide SFs due to S from SO_2 - SO_4 emissions-related deposition based on the (A) BC/Al, (B) Al/Ca, (C) pH and (D) Al soil chemical indicators

5.2.4.2 Uncertainty due to input parameter variability

The results in Figure 5-2 showed that, on average, between 32 and 56% of the SF variations (due to input parameter variability) are within a factor 5.0 ($-0.6990 < \log_{10}(\text{ratio}) < 0.6990$, see Figure 5-2). It is also shown that 30, 45, 53 and 56% of the input parameter scenarios for the pH-, Al-, BC/Al- and Al/Ca-based SFs, respectively, may vary by more than an order of magnitude (Figure 5-2, $-1 > \log_{10}(\text{ratio}) > 1$). Cumulative distributions were independent of the emitted pollutant.

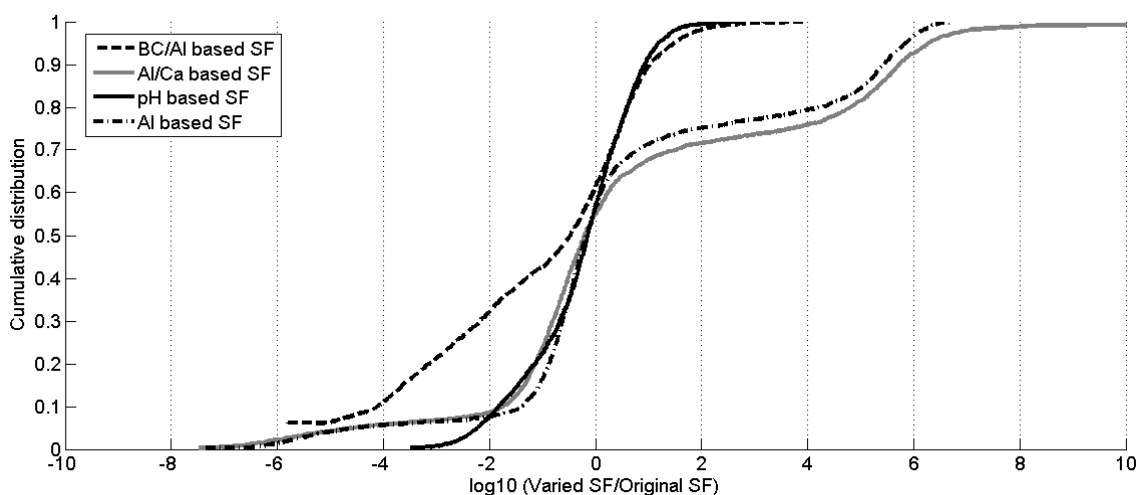


Figure 5-2: Cumulative distribution plot of sensitivity factors' (SFs) Monte Carlo input parameter variability evaluation. Results are expressed as a distribution of ratios between scenarios with varied input parameters divided by scenarios with original (best estimate) parameters in log scale.

5.2.5 Discussion

This paper created a dataset of input parameters with global coverage that then used the PROFILE model to simulate the consequences of acidifying deposits on 99 515 receiving terrestrial environments around the globe with four soil sensitivity indicators. The highest BC/Al-, pH- and Al-based SFs were found in Canada, Scandinavia, the Amazon, central Africa and East and Southeast Asia. SFs are maximized when a small N (from NO_x - HNO_3 or NH_3 emissions) or S (from SO_2 - SO_4) deposits on a large area and induces an important indicator change. The SFs also make it possible to discriminate between two different receiving environments in different countries or on different continents, since SFs vary by several orders of magnitude (Figure

1). This work represents a significant step forward in characterizing the spatially-resolved potential impacts of acidification at a global scale in LCIA. It provides improved environmental relevance compared to acidification potential (the sum of acid deposits minus the sum of base cations deposits at a global scale), as evaluated by Rhode et al. (Rodhe, Dentener, & Schultz, 2002), since it considers the receiving environment. Furthermore, the calculated SFs would be compatible with a subsequent damage modeling step leading to biodiversity loss endpoints (as shown in the third term of Eq. 5.1).

Contrary to risk assessment approaches and due to its comparative nature, LCIA aims for the best estimates when modeling potential impacts (Finnveden et al., 2009). A coarse/broad estimation with associated uncertainty is often preferred to no evaluation at all. From a practical perspective, it would otherwise mean that a given emission will have zero potential impacts. As such, the primary focus of the SF is to identify the most sensitive areas. Consequently, the ultimate goal is not to predict a precise soil chemical indicator value (e.g. pH, BC/Al) but rather to have an indicator that makes it possible to discriminate between receiving environments with different sensitivities.

The Al/Ca indicator therefore cannot provide a sufficient level of discrimination, since numerous areas are equal to 0 or infinity. Similar observations may be made with the BC/Al ratio, since some continental areas are shown to be insensitive. Results showed that pH-based SFs were less prone to be influenced by input parameter uncertainties. It is also believed that, while more certain, pH-based SFs yield better compatibility with a subsequent damage assessment, linking soil pH to certain species-oriented vegetation effects modeling, as shown by Latour and Reiling (Latour & Reiling, 1993).

5.2.5.1 Uncertainties and limitations

Since this study was conducted for an LCIA context, the resulting SFs are not without uncertainties/limitations, as discussed in the following paragraphs.

Firstly, considering the uncertainty of each of the model input parameters, results from Figure 2 showed that most possible SF variations will occur within a factor of 5 for the best estimate pH-based SFs value or a factor of 10 for the other based indicator SFs. In other words, two receiving environments with SF results within these uncertainty margins should be considered equivalent.

Secondly, seasonal or monthly variations in input parameters may be equally as important as spatial variability and more appropriate than yearly averaged parameters. According to Driscoll et al. (DeVries & Breeuwsma, 1987), pH, Al and BC seasonal lakes variability, which are mostly determined by surrounding terrestrial environments (Jeffries & Ouimet, 2004), were evaluated at $\pm 50\%$, $\pm 200\%$ and $\pm 50\%$, respectively. However, since LCA generally does not provide information on the time when emissions occur, the use of an annual average is in line with the scope of the study.

Thirdly, since numerous datasets and resolutions were used to evaluate the input parameters, coastal areas in particular suffered from higher uncertainties, the intersections of maps perhaps distorting their definition.

Fourthly, for this research, steady-state models were chosen over dynamic models because of data availability. This, however, should not be seen as a limitation since dynamic models do not influence the final state of the receiving environment (but only the time to reach it) (Posch et al., 2003). This is therefore in line with LCA, which evaluates potential impacts over an infinite (or long) time period. Among the steady-state models that were used, two were recurrently used in the last twenty years: PROFILE and the simple mass balance (SMB) (Sverdrup & De Vries, 1994). These models are similar in many ways but still have their own characteristics (details in Annexe 3). Kurz et al (Kurz, Eggenberger, & Rihm, 1995) showed a difference in critical load calculation of 25 to 65% between the two models. In this paper, PROFILE was selected over SMB primarily because it enabled weathering rates calculations of ions from independent geophysical properties instead of being a user-defined input parameter, which represents a major hurdle when dealing with numerous types of ecosystems around the world, since other models, including PROFILE, must be used to define weathering rates (Posch, 2004).

Fifthly, with PROFILE, we have also implicitly assumed that the different ecosystems are forest ecosystems (the prominent context of application of the PROFILE model thus far) that differ in terms of their input parameters. To test the validity of this claim, the calculated soil pH values were compared with monitored pH values provided by the global ISRIC-Wise database (v1.1) (Batjes, 2006) and averaged over different biomes (Tableau 5.3) (Batjes, 2006). While the pH values from the ISRIC-Wise database do not reflect a steady-state soil solution, they provide a satisfactory indication of the validity of the assumption, if the different biomes are similarly

represented. The analysis of the ISRIC-Wise database values showed that spatial variability is mostly around $\pm 25\%$ across the considered soil types (Batjes, 2006). It could then be assumed that calculated pH that would differ by a margin of $\pm 25\%$ from the average ISRIC-Wise value could be considered equal to the ISRIC-Wise value. Depending on the biome, 62 to 86% of the receiving environments were found within this $\pm 25\%$ error range. It was therefore deemed acceptable to apply the model to other types of ecosystems.

Tableau 5.3: Fraction (sum equal to 1) of the receiving environments in the different relative error brackets. Relative errors were evaluated between simulated and ISRIC-Wise pH. The measured pH spatial variation within an ISRIC-Wise soil unit is $\pm 25\%$. Previously released PROFILE studies were used in the underlined biomes.

Terrestrial biomes	0% to $\pm 25\%$	$\pm 25\%$ to $\pm 30\%$	$\pm 30\%$ to $\pm 40\%$	$\pm 40\%$ to $\pm 50\%$	$\pm 50\%$ to $\pm 100\%$	> $\pm 100\%$
Tundra	0.68	0.10	0.12	0.08	0.01	0.00
<u>Boreal Forest / Taiga</u>	<u>0.62</u>	<u>0.09</u>	<u>0.16</u>	<u>0.12</u>	<u>0.00</u>	0.00
Temperate Conifer Forests	0.79	0.06	0.10	0.04	0.01	0.00
<u>Temperate Broadleaf and Mixed Forests</u>	<u>0.75</u>	<u>0.08</u>	<u>0.12</u>	<u>0.06</u>	<u>0.00</u>	0.00
Montane Grasslands and Shrublands	0.64	0.09	0.14	0.10	0.03	0.00
Temperate Grasslands, Savannas and Shrublands	0.83	0.04	0.07	0.04	0.02	0.00
Mediterranean Forests, Woodlands and Scrub	0.85	0.05	0.05	0.04	0.02	0.00
Desert and Xeric Shrublands	0.68	0.06	0.09	0.07	0.10	0.00
Subtropical and tropical Moist Broadleaf Forest	0.75	0.08	0.08	0.06	0.03	0.00
Subtropical and tropical Grasslands, Savannas and Shrublands	0.77	0.07	0.09	0.05	0.03	0.00
Subtropical and tropical Coniferous Forests	0.86	0.07	0.06	0.02	0.00	0.00
Subtropical and tropical Dry Broadleaf Forests	0.83	0.07	0.05	0.04	0.01	0.00
Flooded Grasslands and Savannas	0.79	0.06	0.07	0.04	0.03	0.00
<u>Mangroves</u>	<u>0.66</u>	<u>0.10</u>	<u>0.08</u>	<u>0.04</u>	<u>0.12</u>	0.00

Sixthly, the depositions of chloride, sodium magnesium and calcium were evaluated with natural deposition percentages, which were verified by correlating sampling deposition (from all possible emissions sources) measurements at 231 sites in North America with soil dust and or sea/salt deposition vectors (Annexe 3). While correlations were in line with the global natural deposition average that was used, they also showed high spatial variations. For example, in certain areas, calcium deposition amounted to four times the global average. Anthropogenic emissions, in certain regions, may especially contribute to this discrepancy (Zhao, Duan, Larssen, Hu, & Hao, 2007). This deposition uncertainty limits the accuracy of the evaluated indicators. Indeed, when

substituting the deposition data for measured field observations in eastern Canada, 97% of the 804 receiving environments pHs were found within the $\pm 25\%$ range of the ISRIC-Wise values (Annexe 3). However, the unavailability of more reliable deposition data at the global scale, especially with regards to the base cations (Bouwman & al, 2002), prevents indicators accuracy improvements.

Finally, SFs were evaluated with a 10% increment in deposition. However, the quantification of what a marginal change should be is still debated in the literature. Several authors (Huijbregts et al., 2000; Potting et al., 1998) simply used a +10% variation, while others tried a combination of different values with a maximum of 50% (Seppälä et al., 2006; van Zelm et al., 2007). The latter studies showed that results were insensitive to significant increment changes. We also tested 100 randomly chosen receiving environments with deposition increments of 1%, 5% and 10% and found that a change of 1% was not enough to significantly modify pH, while there was a quasi-linear relation between the registered pH (pH driving aluminum concentration) at the 5% and 10% increments. These results are outlined in Annexe 3.

5.2.5.2 Comparison to other studies

The proposed approach is the first to derive $2^{\circ} \times 2.5^{\circ}$ resolution receiving environment factors at the global scale. As such, comparisons with previous studies are difficult. Van Zelm et al. (van Zelm et al., 2007) identified SO₂ emissions as the principal source of acidification in Europe, followed by NH₃ and NO_x emissions. This order is the same as the one in Tableau 5.2. However, Van Zelm et al. also included atmospheric fate and effect factors in their analysis.

The highest SFs found in Canada, Scandinavia, the Amazon, central Africa, East and Southeast Asia were also identified as sensitive by global scale critical approaches (Bouwman & al, 2002; Kuylensstierna et al., 2001). We quantitatively compared the obtained SFs with the global scale critical load exceedance method of Bouwman et al. (Bouwman & al, 2002). To do so, indicator based SFs were classified per pollutant into quintiles (1 the highest SFs and 5 the lowest SFs) based on a cumulative distribution function. This classification was then cross-referenced with the Bouwman critical load exceedance results. Further details on the comparison are presented in Annexe 3. Results showed that, depending on the indicator and for the five SFs classes (50-55%, 30-45%, 20-27%, 18-23% and 10-15%, respectively), the different based SFs exceeded or possibly exceeded Bouwman's critical load. However, this quantitative comparison cannot

amount to definitive conclusions regarding the validity of the obtained SFs since i) the sensitivity classes used by the global scales critical load approaches rely on different sensitivity indicators (CEC and base saturation) and ii) the critical load exceedance may not be correlated with large SFs, since a large SF may be caused by a significant change in indicator values, a large area and/or a very small deposition value.

Finally, though it was not the objective of the paper to calculate accurate indicator values, the results in Tableau 5.3 show that the calculated pH values were, by and large, in line with the ones from the global dataset.

5.2.6 Perspectives

This study therefore opens new doors for the calculation of regional indicators at the global scale for use in LCIA. However, to calculate global regionalized CFs to characterize the potential impacts of worldwide life cycle inventories on terrestrial acidification, regionalized atmospheric fate factors and effect factors at a global scale are required (as per Eq. 5.1). Current research is already focusing on the development of atmospheric fate factors based on the GEOS-Chem model at a global scale $2^{\circ} \times 2.5^{\circ}$ spatial grid resolution (Roy, Huijbregts, Deschênes, & Margni, 2011). Further efforts will target the development of regression curves linking pH (or alternatively H^{+} concentration) to biodiversity loss indicators such as the *potentially not occurring fraction* (PNOF) of vascular plant species (Azevedo et al., 2011).

In parallel, to use the upcoming CFs to their full potential, spatially-explicit emissions flows databases at a global scale must be developed. The unavailability of such databases has prevented the widespread use of readily available country- or continent-dependant CFs to characterize acidifying emissions in existing LCA case studies. Today, however, major database providers such as ecoinvent (v3) (Weidema et al., 2012) are developing regional modules covering different regions of the world and addressing the geographical locations of emission flows. For the time being however, the upcoming CFs could be aggregated at coarser resolutions (i.e. global, continental, country) to meet the current needs of LCA practitioners. In so doing, it would be possible to evaluate the “mistake” (from spatial variability) in the use of these coarser CFs, and LCA practitioners could thus gain confidence (or not) in their LCIA results.

Acknowledgements

Special thanks to Gabriel Morin for his expertise and to Paul F. Reich of the USDA Natural Resources Conservation Service for the GIS map of the global soil regions.

The CIRAIG would also like to thank its industrial partners for their financial support: ArcelorMittal, Bombardier, Bell Canada, Cascades, Eco Entreprises Québec, RECYC-QUÉBEC, Groupe EDF, Gaz de France, Hydro-Québec, Johnson & Johnson, LVMH, Michelin, Mouvement des caisses Desjardins, Nestlé, Rio Tinto Alcan, RONA, SAQ, Solvay, Total, Umicore, and Veolia Environment.

CHAPITRE 6 DÉVELOPPEMENT DE FACTEURS DE CARACTÉRISATION RÉGIONALISÉS, PROBLÈMES ET DOMMAGES, À L'ÉCHELLE PLANÉTAIRE POUR L'ACIDIFICATION TERRESTRE

Cette section est centrée autour d'un manuscrit (jamais soumis à ce jour) intitulé « *Uncertainty and spatial variability in characterization factors for terrestrial acidification at the global scale* » (section 6.2).

6.1 Lien avec les deux premiers manuscrits

Le premier manuscrit évaluait le facteur de devenir atmosphérique et le second, le facteur de sensibilité des milieux récepteurs terrestres; deux facteurs nécessaires au calcul des FCs de l'acidification terrestre. Le travail présenté dans cette section combine ces deux facteurs au facteur d'effet, obtenu à partir des résultats de modèles de régression développés en collaboration avec l'université de Radboud, aux Pays-Bas, afin de calculer des FCs dommages pour l'acidification terrestre. Une fois ces facteurs calculés, une série d'analyse est effectuée permettant de répondre aux questions suivantes : quelle est la contribution des impacts liés à la déposition transfrontalière? Quelle est la variabilité spatiale des FCs et quel facteur (i.e. facteur de devenir atmosphérique, facteur de sensibilité et/ou facteur d'effet) est principalement responsable de cette variabilité? Quelle est l'incertitude des FCs et quel facteur est principalement responsable de cette incertitude? Considérant la variabilité spatiale et l'incertitude, quelle devrait être la dénomination du FC de type problème?

6.2 “Uncertainty and spatial variability in characterization factors for terrestrial acidification at the global scale”

6.2.1 Abstract

Characterization factors (CFs) that quantify the impact of acidifying emissions on the richness of terrestrial plant species in life cycle assessment (LCA) are currently available on a European continental level only. This paper provides spatial-explicit CFs for terrestrial acidification by emissions of nitrogen oxides (NO_x), ammonia (NH_3) and sulphur dioxide (SO_2) at the global scale. Here, the CF represents the change in relative loss of terrestrial vascular plant species richness due to an emission change, which includes the subsequent steps from emission to change in atmospheric acid deposition (atmospheric fate factor) as well as in soil solution H^+ concentration (soil sensitivity factor) and the loss in relative vascular plant species richness (effect factor). We evaluated the significance of each factor (i.e. atmospheric fate, soil sensitivity and effects) to the overall spatial variability and uncertainty in the CFs. We demonstrated that the soil sensitivity factor is the dominant contributor to spatial variability in the CFs. The CFs ranged over six orders of magnitude, while the sum of atmospheric fate and soil sensitivity ranged over five orders of magnitude. Atmospheric fate alone only ranged over one order of magnitude. The statistical uncertainty analysis showed that CFs may vary between factors of 0.032 to 32 (with 95% confidence). Ecological effects are the dominant contributors to CF uncertainties, with a 90% share of the total uncertainty, while atmospheric fate and soil sensitivity factors shares amounted to 4% and 6%, respectively.

6.2.2 Introduction

Terrestrial acidification is the result of atmospheric acidifying emissions of nitrogen oxides (NO_x), ammonia (NH_3) and sulphur dioxide (SO_2) and their subsequent deposition on soils. Acid deposits may decrease the soil's pH. For nearly every species, there is a pH optimum. Consequently, a large deviation from this optimum will impact the richness of an ecosystem's plant species (Posch, 2004).

Life cycle assessment (LCA) evaluates the potential impacts of a product or service throughout its life cycle (Udo de Haes et al., 2002). The potential environmental impacts of a given life cycle

emission inventory are assessed using characterization factors (CFs). Endpoint level CFs are a mathematical representation of the cause-effect chain that links an emission to the ultimate impact of a given area of protection (e.g. human health, biodiversity loss) (Udo de Haes et al., 2002). The endpoint approach makes it possible to aggregate impacts from stressors with a different mode of action (e.g. acidification, eutrophication, ecotoxicity).

Historically, LCA evaluated potential impacts in a standardized or generic *unit world* and with simplified modeling of a *typical* pollutant's fate, exposure and effect patterns (Potting & Hauschild, 2006). However, Potting et al. (Potting et al., 1998) showed that source location and surrounding conditions strongly influenced CFs. Therefore, developments shifted to country- or continent-dependant CFs representative of certain regions, such as Europe, the United States or Japan (Bare et al., 2002; Goedkoop & Spriensma, 2001; Hayashi et al., 2004; Huijbregts et al., 2000; Potting et al., 1998; Seppälä et al., 2006; van Zelm et al., 2007). Yet, applying existing continental or country CFs implicitly assumes that every emission in the life cycle inventory of a product occurs in the specified region—an erroneous assumption in a global market economy. At this time, there are no spatially-explicit CFs for terrestrial acidification at the global scale.

Moreover, current CFs do not account for the transport of acidifying emissions outside the considered geographical context. Neglecting transboundary transport to areas with limited buffer capacity (i.e. sensitive areas) may result in a large underestimation of CFs. Thus, there is a need to develop a spatial-explicit life cycle impact assessment method at the global level that includes transboundary transport in CF derivation.

Finally, while the spatial variability of CFs in many impact categories, including acidification, has been evaluated (European Commission-Joint Research Centre, 2011), uncertainties are seldom considered in CF calculation. It has, however, been recognized that uncertainty evaluation is required in order to support LCA results interpretation (Finnveden et al., 2009).

The objective of this paper is to develop spatially-explicit endpoint CFs for NO_x, NH₃ and SO₂ at the global scale with a spatial resolution of 2°x2.5° (latitude x longitude) that includes atmospheric fate, soil sensitivity and ecological effects. In this context, we evaluate the importance of transboundary transport to the CFs and the contribution of atmospheric fate, soil sensitivity and ecological effects to the spatial variability and uncertainty of CFs.

6.2.3 Method

6.2.3.1 Characterisation factors

The terrestrial acidification endpoint CFs were defined based on Van Zelm et al. (van Zelm et al., 2007) as a change in the potentially not occurring fraction of vascular plant species (PNOF) summed over the receiving areas j , due to a marginal change in the emission of acidifying substance p at the source location i . The mathematical expression to convert atmospheric emissions of acidifying substances into an endpoint indicator is presented in eq 6.1. The endpoint CF can be subdivided into an atmospheric fate factor (FF), a soil sensitivity factor (SF) and an effect factor (EF). CFs are expressed in $[\text{m}^2 \times \text{yr} \times \text{kg}_{\text{emitted}}^{-1}]$ and were calculated for 13 104 $2^\circ \times 2.5^\circ$ spatial resolution emissions grids.

$$CF_{i,p} = \sum_j (FF_{i,j,p} \times SF_{j,p} \times EF_j) \quad (6.1)$$

6.2.3.2 Atmospheric fate factors

The atmospheric fate factor (eq 6.2; $[\text{keq} \times \text{kg}_{\text{emitted}}^{-1}]$) describes the link between the change in pollutant emission in grid cell i of acidifying pollutant p and the change in acid deposition on soil j .

$$FF_{i,j,p} = \frac{dD_{j,p}}{dE_{i,p}} \quad (6.2)$$

Where $D_{j,p}$ $[\text{keq} \times \text{yr}^{-1}]$ is pollutant p deposition on soil j related to emission $E_{i,p}$ $[\text{kg NO}_x, \text{NH}_3 \text{ or } \text{SO}_{2\text{emitted}} \times \text{yr}^{-1}]$ at location i .

Atmospheric fate factors were taken from Roy et al. (Roy, Huijbregts, Deschênes, & Margni, 2012), who calculated worldwide source receptor matrices (SRMs) whose elements are spatially explicit $2^\circ \times 2.5^\circ$ atmospheric fate factors. For a given emission vector, the resulting grid-specific depositions can be obtained by matrix-vector multiplication, avoiding the evaluation of the entire numerical (generally) non-linear model(s) of atmospheric transport and dispersion processes (Seibert & Frank, 2003).

Roy et al. based their calculations on the GEOS-Chem global tropospheric chemistry model (Bey et al., 2001). GEOS-Chem is a global 3D model of tropospheric chemistry driven by assimilated

meteorological observations from the Goddard Earth Observing System (GEOS) of the NASA Data Assimilation Office (Bey et al., 2001). Roy et al. used the yearly averaged results from a GEOS-Chem 2°x2.5° grid spatial resolution simulation for the 2005 reference year (2005 being representative of the average from 1961 to 1990, according to the National Oceanic and Atmospheric Administration's National Climatic Data Center (NOAA National Climatic Data Center, 2005)).

6.2.3.3 Soil sensitivity factors

The soil sensitivity factor (eq 6.3; $[\text{mol H}^+ \text{ L}^{-1} \times \text{m}^2 \times \text{keq}^{-1} \times \text{yr}]$) evaluates the change in soil solution H^+ concentration due to a change in the atmospheric deposits of pollutant p on soil j .

$$SF_{j,p} = \frac{\partial C_j}{\partial D_{j,p}} \times A_j \approx \frac{\Delta C_j}{\Delta D_{j,p}} \times A_j \quad (6.3)$$

Where C_j $[\text{mol H}^+ \times \text{L}^{-1}]$ is the soil solution H^+ concentration of soil j and A_j $[\text{m}^2]$ its area. A_j was defined by the sum of the areas of soils with the same PROFILE input parameters within a 2°x2.5° atmospheric grid. In total, 99 515 receiving areas across the 13 104 atmospheric grids were considered.

Due to the complexity of the link between soil solution H^+ concentration and deposition, an empirical approach was used to calculate the soil sensitivity factor. We introduced changes in pollutant deposition from a 10% increase in emissions, which is a commonly used relative increase in LCIA studies (Huijbregts et al., 2000; Krewitt et al., 2001; Potting et al., 1998).

The spatially-explicit soil sensitivity factors were derived using the method developed by Roy et al. (Roy, Deschênes, & Margni, 2012). The soil sensitivity factors (SFs) were calculated with the PROFILE (Warfvinge & Sverdrup, 1992) geochemical steady-state model. PROFILE is based on the mass balance calculations of different soil layers. Among other outputs, it estimates the pH in the soil layer solution. The model required atmospheric deposition values, weather characteristics and soil parameters. These inputs were derived by Roy et al. (Roy, Deschênes, et al., 2012) and detailed in *Chapitre 5*. In keeping with the ISRIC-Wise database (v 1.1) (Batjes, 2006), the soil depth was set to 1 m and split into five layers of 20 cm each. With this depth, we covered most of the vegetation root zone (92 to 100%) (see *Annexe 3*). To determine the SFs, single averaged pH values were calculated using the biome-specific roots distribution fraction in Jackson et al.

(Jackson et al., 1996) as a weighting factor (see *Annexe 3*). Biomes are biogeographic regions with similar ecological and environmental characteristics. We used the terrestrial ecoregion and biome classification (14 in total) by Olson et al. (Olson et al., 2001).

6.2.3.4 Effect factors

The potentially not occurring fraction (PNOF) of vascular plant species can be calculated from the following logistic regression (Azevedo, Van Zelm, Hendriks, Bobbink, & Huijbregts, 2012):

$$PNOF_j = \frac{1}{1 + e^{-\frac{-(\log(C_j) - \alpha_b)}{\beta_b}}} \quad \text{for biome } b \text{'s } pH < pH_{\text{optimum}} \quad (6.4)$$

Where $PNOF_j$ is the potentially not occurring fraction of vascular plant species of biome b associated with soil j , α_b represents the pH at which 50% of vascular plant species potentially do not occur in biome b , and β_b is the slope of the logistic function of relative species richness along a soil pH gradient in biome b (Azevedo et al., 2012). This equation was applied when the soil pH was below the optimum pH. The optimum pH (pH_{optimum}) represents the pH value at which species richness is highest in biome b . Each soil j was allocated to its respective biome b using the map by Olson et al. (2001) (Olson et al., 2001) in ArcGIS (v.9.3).

If the soil pH (as calculated with the deposition from 2005 emissions in the PROFILE model) was higher than or equal to pH_{optimum} , then EF was considered zero. If the soil pH was lower than the pH_{optimum} , the effect factor $[(\text{mol H}^+ \text{ L}^{-1})^{-1}]$, which evaluates the change in PNOF as a function of the changes in soil H^+ concentration (C_j) at the receiving environment j location, was calculated in eq. 6.5. The soil H^+ concentration from the PROFILE model was used as the working point for the effect factor.

$$EF_j = \frac{dPNOF_j}{dC_j} = -\left(PNOF_j\right)^2 \times \left(e^{\frac{-(\log 10(C_j) + \alpha_b)}{\beta_b}} \right) \times \left(\frac{-1}{\beta_b} \times \frac{1}{(C_j \times \ln(10))} \right) \quad (6.5)$$

Optimum pH, α_b and β_b values for 12 of the 14 terrestrial biomes were taken from Azevedo et al. (Azevedo et al., 2012) (*Annexe 4*). Azevedo et al. could not evaluate the model parameters for the subtropical and tropical dry broadleaf forest and the subtropical and tropical coniferous forest due to the lack of sampling data for these regions. The model values for these biomes were approximated with the subtropical and tropical moist broadleaf forest biome based on a similar

Köppen-Geiger climate map (Kottek, Grieser, Beck, Rudolf, & Rubel, 2006). The biome-specific coefficients are presented in the *Annexe 4*.

6.2.3.5 Significance of transboundary transport

To establish the contribution of transboundary transport (CTT; [%]) to the CFs, we calculated the percentage of the impact occurring outside the continental scale for each emission grid (see eq. 6.6). Continents were defined by a geographic information system (ArcMap 9.3) that provided a continental map. The greater the ratio, the greater the significance of transboundary transport to CFs calculation.

$$CTT = \left[1 - \frac{\sum_j (FF_{i,j,p} \times SF_{j,p} \times EF_j)_{continental}}{\sum_j (FF_{i,j,p} \times SF_{j,p} \times EF_j)} \right] \times 100\% \quad (6.6)$$

6.2.3.6 Regression analysis

The influence of the FFs, SFs and EFs on the spatial variability of the CFs was evaluated for each 2°x2.5° grid via regression analysis. On a log scale, the spatial variability in $\sum FF$ and $\sum FF \times SF$ were compared to their endpoint CFs per pollutant. The following statistics were considered for the regression analysis: the slope of the log-linear regression, the coefficient of determination (R^2), the standard error and the residual sum of squares (RSS). A lack of correlation between the different factors would be expressed by a slope close to zero, a low coefficient of determination and a high standard deviation and residual sum of squares.

6.2.3.7 Uncertainty analysis

The influence of the FFs, SFs and EFs on the statistical uncertainty of the CFs was evaluated through Monte Carlo simulation in Matlab (v 7.10). The uncertainty in each FF was specified with a lognormal distribution, defined by the calculated FFs and a standard deviation that increased proportionally with distance from the emission location, following observations in Roy et al. (Roy, Huijbregts, et al., 2012). The uncertainty in each SF was considered to be lognormally distributed with a factor of 100 (95% confidence interval), as observed by Roy et al. (Roy, Deschênes, et al., 2012). The uncertainty in each EF was based on the uncertainty in the pH estimates (the working point of the pH-PNOF relationship curve) and the uncertainty in α and β .

The 95% confidence intervals for pH were taken from Roy et al. (Roy, Deschênes, et al., 2012). For α and β , the 95% confidence intervals were taken from Azevedo et al. (Azevedo et al., 2012) (*Annexe 4*). For the biomes with model parameters derived from other biomes with similar climate conditions, we quantified an EF standard deviation originating from a switch from known parameters to parameters from a completely different “similar climate condition” biome (e.g. boreal forests parameters were approximated using mixed forests parameters instead). The uncertainty in the EFs for these two biomes were obtained with a lognormal distribution, defined by the calculated EFs and the previously calculated standard deviation (*Annexe 4*).

We then sampled 1 000 values for FFs, SFs and EFs based on the uncertainty distributions specified above. To ensure coherence, the sum of the sampled FFs, for the deposition locations, was evaluated and could not amount to more than 1 kg_{deposited}/kg_{emitted}. If the sum exceeded this limit, the samples were discarded and new values were sampled. With those samples we calculated 1 000 CFs for each emitting grid, indicating the uncertainty in the grid-specific CF values.

6.2.3.8 Region-specific characterization factors

Since the specific source locations of the input and output processes compiled in the LCI phase are seldom known (Finnveden et al., 2009), LCA practitioners often require coarser resolutions to assess the potential impacts of compiled emission inventories. For some emissions, the specific source location may be known; for others, only the continent or country (and possibly region) may remain unidentified (Finnveden et al., 2009). Thus, to meet the needs of the LCA practitioner, we also derived emission-weighted CFs at three additional resolution levels: country, continent and world. The ArcMap 9.3 geographic information system (GIS) software was used to determine country and continental areas.

We also quantified the error from using global, continental or country CFs instead of a specific 2°x2.5° CF by evaluating the ratio between the 2°x2.5° CFs and the given spatial resolution CFs (eq 6.7).

$$Ratio = \frac{2^\circ \times 2.5^\circ \text{ CF within the coarser resolution}}{\text{CF of the coarser resolution}} \quad (6.7)$$

6.2.4 Results

6.2.4.1 Characterisation factors

Figure 6-1 shows the boxplot of the spatially differentiated CFs (at $2^\circ \times 2.5^\circ$) for the three acidifying pollutants that were considered. The median CF of NH_3 is higher ($2.12 \text{ m}^2 \times \text{yr} \times \text{kg}_{\text{emitted}}^{-1}$) than the median CF of SO_2 ($2.08 \text{ m}^2 \times \text{yr} \times \text{kg}_{\text{emitted}}^{-1}$) and NO_x ($1.18 \text{ m}^2 \times \text{yr} \times \text{kg}_{\text{emitted}}^{-1}$).

CFs range over five (for NO_x and SO_2) or six (for NH_3) orders of magnitude. The spatial variability of the CFs of a given pollutant is orders of magnitude higher than the variability between pollutants. Grid specific CF results are presented in *Annexe 4*.

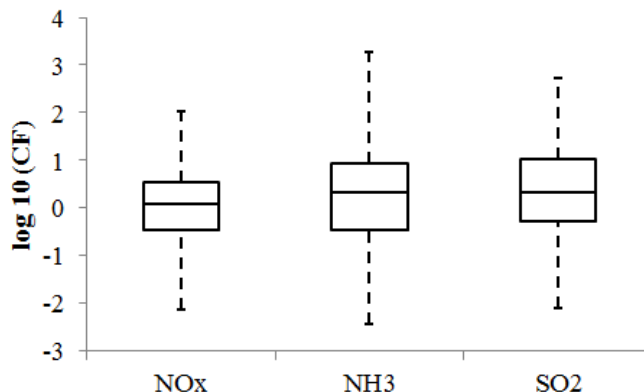


Figure 6-1: Boxplot of spatially differentiated characterization factors at $2^\circ \times 2.5^\circ$ grid resolution for NO_x , NH_3 and SO_2 . The edge of the box represents the 25th-75th percentiles, the line in the box represents the median and the whiskers represent the minimum and maximum of the distribution.

6.2.4.2 Significance of transboundary transport

Figure 6-2 shows the cumulative distribution of the potential impacts occurring outside the continental scale for continental emissions of NO_x , NH_3 and SO_2 . For example, depending on the emitted pollutant, between 55 and 67% of continental $2^\circ \times 2.5^\circ$ grids have less than 10% of their total potential impact associated with transboundary transport. On average, 17%, 14% and 15% of the impacts from continental emissions occur outside the continental scale. Grid-specific results are presented in *Annexe 4*.

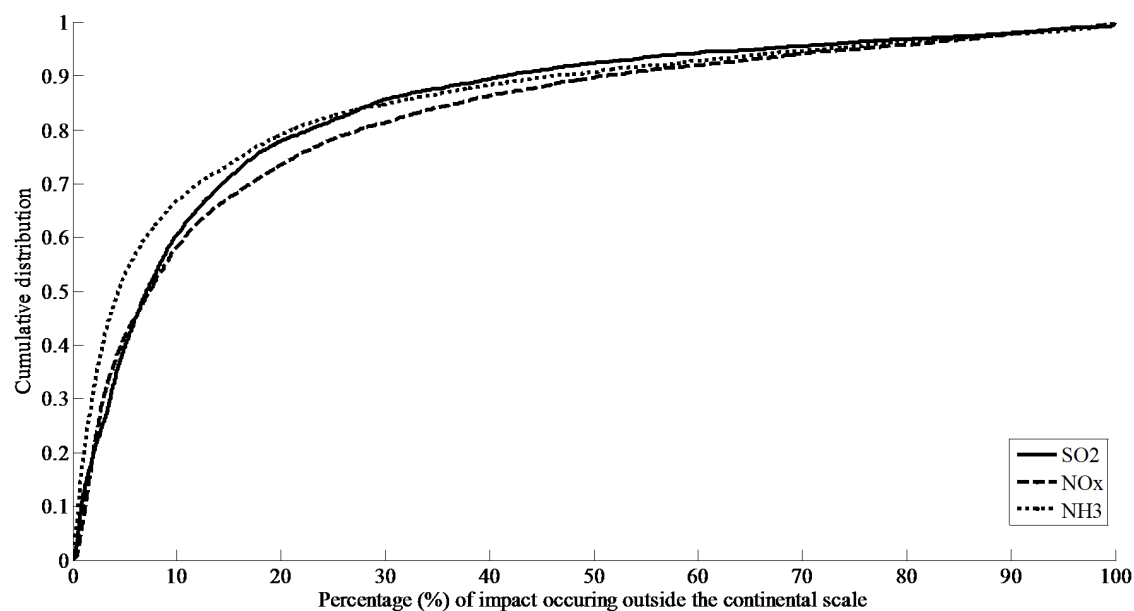


Figure 6-2: Percentage of potential impact per pollutant occurring outside the continental scale (X-axis) for the cumulative distribution of continental $2^{\circ} \times 2.5^{\circ}$ grids (Y-axis)

6.2.4.3 Regression analysis

Tableau 6.1 presents the results of the regression analysis. Results showed an explained variance of less than 0.06 for $\sum FF$ towards CF. The explained variance of $\sum FF \times SF$ towards CF results is an explained variance between 0.88 and 0.94 with slopes of the linear regression that approximate 1. The stronger correlation between $\sum FF \times SF$ and endpoint CFs is also confirmed by the relatively low standard error and residual sum of squares of the regressions.

Tableau 6.1: Regression analysis of the spatial variability between endpoint characterization factors (i.e. $\sum FF \times SF \times EF$) with both atmospheric fate ($\sum FF$) and atmospheric fate-soil sensitivity ($\sum FF \times SF$) per emitted pollutants

	Equation of linear regression	Coefficient of correlation (R^2)	Standard error	Residual sum of squares (RSS)
$\sum FF$ and CF (i.e. $\sum FF \times SF \times EF$)				
NO _x	$\log (CF) = 0.4 \log (\sum FF) + 3.3$	0.004	0.73	6171.4
NH ₃	$\log (CF) = -2.0 \log (\sum FF) - 15.2$	0.06	0.93	9610.7
SO ₂	$\log (CF) = 1.0 \log (\sum FF) + 8.2$	0.02	0.82	7368.5
$\sum FF \times SF$ and CF (i.e. $\sum FF \times SF \times EF$)				
NO _x	$\log (CF) = 1.1 \log (\sum FF \times SF) + 3.8$	0.93	0.19	364.1
NH ₃	$\log (CF) = 1.0 \log (\sum FF \times SF) + 3.6$	0.94	0.24	603.9
SO ₂	$\log (CF) = 1.1 \log (\sum FF \times SF) + 3.9$	0.88	0.29	902.6

6.2.4.4 Uncertainty analysis

The results in Figure 6-3 showed that, within a 95% confidence interval, the ratios between the Monte Carlo varied and original $\sum FF$, $\sum FF \times SF$ and CF were found inside a $10^{\pm 0.1}$ (0.79-1.26), $10^{\pm 0.5}$ (0.32-3.2) and $10^{\pm 1.5}$ (0.032-32) interval, respectively.

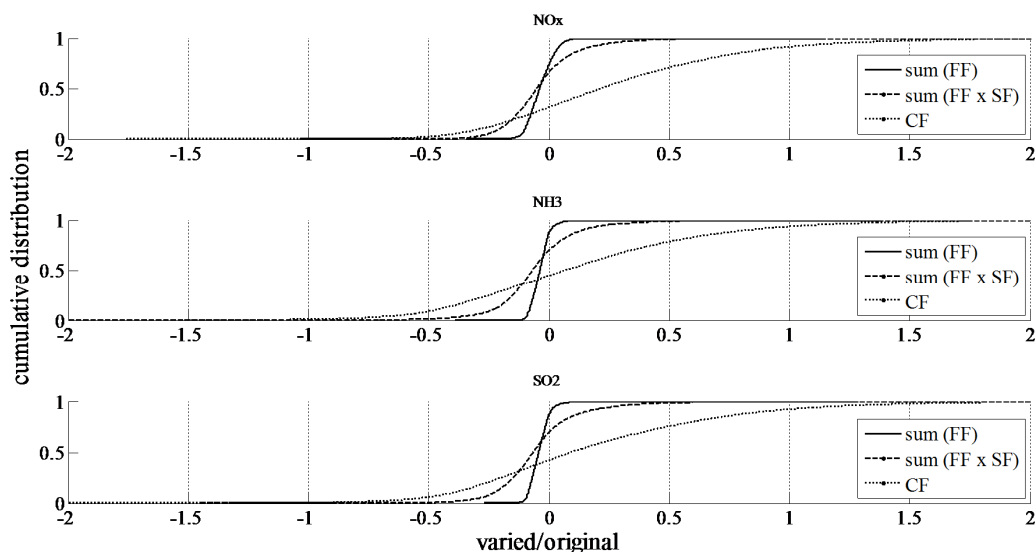


Figure 6-3: log 10 of the ratio between the Monte Carlo varied and original $\sum FF$, $\sum FF \times SF$ and CF (X-axis) for the cumulative distribution of $2^\circ \times 2.5^\circ$ grids (Y-axis) for emissions of NO_x, NH₃ and SO₂.

6.2.4.5 Region-specific characterization factors

Global, continental and country averaged CFs are available in *Supporting information 4*. The results in Figure 6-4 showed that, on average, the ratio between a $2^\circ \times 2.5^\circ$ CF within a given spatial resolution and its coarser resolution CF is between 0.6-0.9, 1.1-1.7 and 1.0-1.3 for the global, continental and country resolutions, respectively. This means that $2^\circ \times 2.5^\circ$ CFs found within countries, for example, will be, on average, 1.0 to 1.3 times higher than the country CFs. It is also demonstrated that 24 to 36%, 4 to 12% and 1 to 4% of the $2^\circ \times 2.5^\circ$ CFs within the global, continental and country spatial resolutions, respectively, may vary by more than one order of magnitude (Figure 6-4, $-1 > \log_{10}(\text{ratio}) < 1$) as compared to the specified coarser spatial resolution CFs.

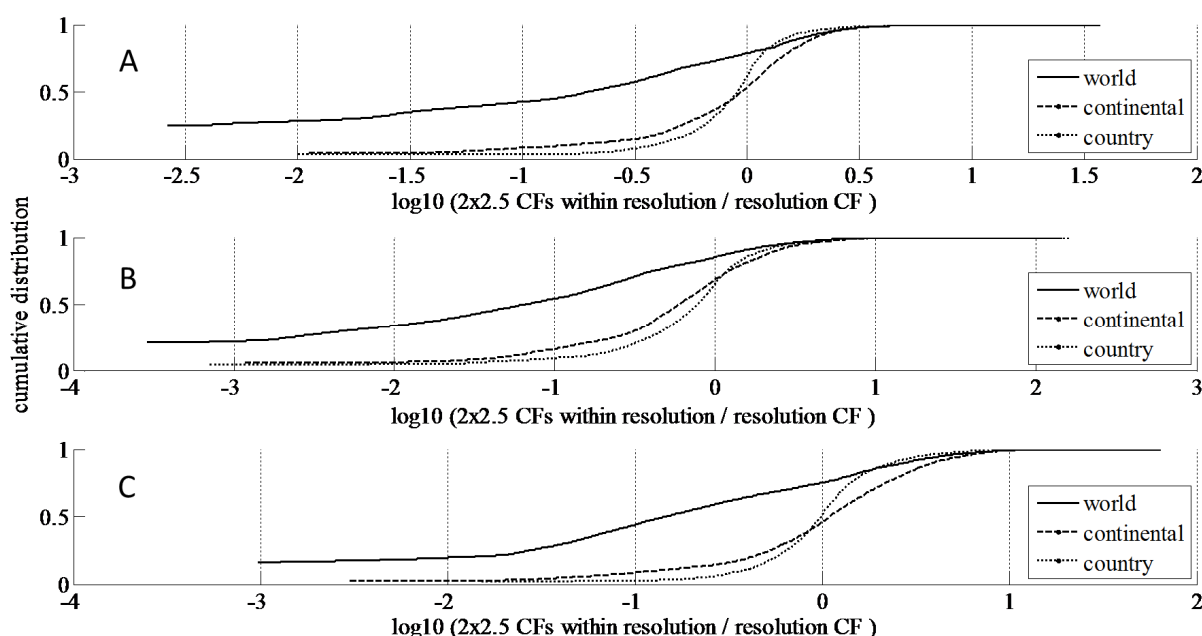


Figure 6-4: Cumulative distribution of the log 10 of the ratio between the $2^\circ \times 2.5^\circ$ CFs found within the global, continental or country level resolution and the global, continental or country level resolution CFs (X-axis) for emissions of a) NO_x , b) NH_3 and c) SO_2 .

6.2.5 Discussion

This study outlines spatially-explicit CF for terrestrial acidification at the global scale, thus enabling the assessment of the life cycle emissions occurring across the globe and overcoming

the current limitation that assumes that all emissions occurs within a specific reference area (e.g. Europe, United States or Japan).

We also showed the importance of including the potential impacts of transboundary transport in CF calculation beyond the continental scale. While transboundary transport typically represents 4% of a total continental deposition (Roy, Huijbregts, et al., 2012), this deposition amounted to a share of typically 15 to 17% of the pollutant potential impacts. Consequently, current LCIA methods underestimate the potential impacts of acidifying emissions.

6.2.5.1 Limitations

The following limitations related to the assumptions and/or choices in the CF calculations are discussed below. Firstly, deposition was considered evenly distributed within a $2^{\circ} \times 2.5^{\circ}$ grid, neglecting local factors favouring deposition (e.g. mountains) in certain regions within the grid. Without higher resolved global atmospheric models, this situation cannot be averted.

Secondly, terrestrial acidification has many impacts, including nutrient depletion and an increase in soil solution H^{+} concentration (or decrease of pH) and aluminum toxicity (Jeffries & Ouimet, 2004). By using soil solution H^{+} concentration as the soil sensitivity indicator, we evaluated the direct harm to the vegetation. The increase in soil solution H^{+} concentration was chosen over the other types of indicators because it is recognized as a successful predictor of species richness and a primary indicator of soil acidity (Peppeler-Lisbach & Kleyer, 2009,; Whittaker, 1972). Furthermore, Roy et al. (Roy, Deschênes, et al., 2012) showed that other soil sensitivity indicators, such as aluminum concentration or nutrient concentration (in the form of base cations), were more sensitive to soil input parameters uncertainties as compared to soil acidity.

Thirdly, the quantification of a *marginal change* is still under discussion. Several authors (Huijbregts et al., 2000; Krewitt et al., 2001; Potting et al., 1998) used a +10% variation, while others tried a combination of different values with a maximum of 50% (Seppälä et al., 2006; van Zelm et al., 2007). These studies showed that results were insensitive to important increment changes. Similarly, Roy et al. (Roy, Deschênes, et al., 2012) tested the variations of the receiving environment sensitivity factor over 100 randomly chosen receiving environments with increments of deposition of 1%, 5% and 10%. The results indicated that a 1% change was not sufficient to create a change in pH values in numerous soils, while a quasi-linear relation between

the registered pH at 5% and 10% increment was observed. Thus, we deemed a 10% increment to be acceptable.

Fourthly, our endpoint CFs consider that there is no loss of species if the pH is above the optimum (i.e. the pH at which species richness is highest (eq. 6.5)). Consequently, EFs in 66% of the receiving environments were considered equal to 0. This high proportion is in line with the findings of Bouwman et al. (Bouwman & al, 2002), who estimated that most areas in the world (83 to 93%) would not suffer from acidifying effects. However, this does not imply that a specific species will not be affected by a change in pH higher than the optimum. Our approach therefore does not enable the assessment of the effects of acidifying substances on specific species.

Finally, missing model regression parameters impaired the effect assessment in Central America, India and the mountain regions of Asia. Indeed, these territories were approximated with parameters from other environments. The lack of data for these regions hinders the accurate interpretation of the potential impacts.

6.2.5.2 Comparison to other studies

We compared our European CFs with the CFs from Goedkoop et al. (Goedkoop & Spriensma, 2001) and Van Zelm et al (van Zelm et al., 2007). Results are presented in Tableau 6.2.

This study and Van Zelm et al. showed a similar relative importance of NO_x, NH₃ and SO₂ per unit emission. However, Van Zelm's derived, systematically lower CFs values. This may be explained by the fact that Van Zelm et al. i) used the EUTREND (Van Jaarsveld. et al., 1997) atmospheric model, which does not account for transboundary air emissions; ii) used the dynamic soil model SMART (Kros et al., 1995), whose steady-state version showed a 25 to 65% difference with PROFILE when calculating critical loads (Kurz et al., 1995); iii) assessed changes in soil base saturation instead of H⁺ concentration; iv) used a base saturation-PNOF dose-response curve that yielded a gentler slope than the H⁺ concentration-PNOF dose-response, thus creating lower EFs; and/or v) limited their assessment of potential impacts to European forest ecosystems, unlike our assessment, which, indiscriminately to their land occupation, included numerous types of ecosystems.

This study and Goedkoop et al. resulted in similar absolute CFs for NO_x and NH₃. However, the studies differ significantly in terms of SO₂. This may be explained by the fact that Goedkoop et

al. i) modeled the impacts for the Netherlands and extrapolated their results to Europe; ii) did not rely on atmospheric fate modelling, preferring a 10 mole marginal change to mapped deposition levels; iii) used the SMART model to evaluate changes in many soil properties, assessing the potential impacts of both acidification and eutrophication (SO₂ is not a eutrophying substance) instead of soil acidity changes iv) assessed the potentially disappeared fraction of species (PDF) for more than 900 Dutch plant species with the MOVE model (Latour & Reiling, 1993).

Tableau 6.2: Comparison of available biodiversity losses endpoint CFs

	This study		Van Zelm et al.		Goedkoop et al.	
	CFs [PNOF m2 yr/kg]	Contribution [%]	CFs [PNOF m2 yr/kg]	Contribution [%]	CFs [PDF m2 yr/kg]	Contribution [%]
NO _x	5.03	12.8	0.37	15.6	5.71	25.6
NH ₃	20.3	51.7	1.49	62.9	15.57	69.7
SO ₂	14.0	35.6	0.51	21.5	1.04	4.66

6.2.5.3 Spatial variability and uncertainty analysis

Regression analysis showed that atmospheric fate factors alone only explain a relatively small part of the CFs' spatial variability. It also showed that soil sensitivity factor was the major contributor to the CFs' spatial variability. It should be noted, however, that, while there seems to be a linear correlation between $\sum \text{FF} \times \text{SF}$ and the endpoint CFs, the CF still ranges over at least one order of magnitude for the same $\sum \text{FF} \times \text{SF}$ value.

The uncertainty analysis showed that the addition of each new modeling step to calculate the respective intermediary parameters increased the uncertainty. With a 95% confidence interval, it could be assumed that the FF is responsible for approximately 4%, SF for 6% and EF for 90% of the CFs total uncertainty.

Considering spatial variability and uncertainty, we recommend that the LCIA of acidifying emissions include an evaluation of both atmospheric fate and soil sensitivity. This assessment could be seen as a trade-off between environmental relevance and uncertainty. While it is undeniable that the integration of ecological effect factors to calculate endpoint CFs reveals information on the actual damage to ecosystems and allows for the meaningful aggregation of the consequences of different impacts, it can also be concluded that the EF increases uncertainty without significant added value in terms of spatial variability.

6.2.6 Perspectives

The characterization factors provided in our study make it possible to evaluate the impacts of acidifying emissions on the relative species richness of vascular terrestrial plant species at the global scale in a spatial explicit way. This implies that the same emission occurring at two different locations can result in different impacts. Today, database providers such as ecoinvent (v3) (Weidema et al., 2012) are developing regional modules that cover different regions of the world and address the geographical locations of emission flows. In the event that the emission location is not known or approximately known, region-specific CFs on a country or continental scale or global default CFs may be used, making it possible to assess the uncertainty inherited from the lack of spatial information.

Acknowledgements

Special thanks to Cécile Bulle, Olivier Jolliet, Vahid Partovi Nia and Guillaume Bourgeault for their expertise regarding the evaluation of uncertainties.

The CIRAIG would like to thank its industrial partners for their financial support: ArcelorMittal, Bombardier, Bell Canada, Cascades, Eco Entreprises Québec, RECYC-QUÉBEC, Groupe EDF, Gaz de France, Hydro-Québec, Johnson & Johnson, LVMH, Michelin, Mouvement des caisses Desjardins, Nestlé, Rio Tinto Alcan, RONA, SAQ, Solvay, Total, Umicore and Veolia Environment.

The research was partly funded by the European Commission under the Seventh Framework Programme on environment (ENV.2009.3.3.2.1: LC-IMPACT - Improved Life Cycle Impact Assessment methods (LCIA) for better sustainability assessment of technologies).

6.3 Other comparisons of terrestrial acidification CFs

Much like the comparison found in Tableau 6.2, we compared our $\sum FF$, $\sum FF \times SF$ and CFs with other CFs found in the literature on the basis of the contribution of the emitted pollutants to the impact score when 1 kg of each pollutants are emitted. Results are presented in Figure 6-5. The obtained results from the developed CFs, showed a share of about 20%, 50% and 30% of the potential impacts belonging to NO_x , NH_3 and SO_2 emissions.

Observed discrepancies can be explained by differences in framework, chosen impact category indicator, input parameters, and modeling approach.

The global scale approach of Steen et al. (Steen, 1999) did not rely on any modelling, preferring a number of hypotheses. Bare et al (Bare et al., 2002) used the North American regional model ASTRAP (Shannon, 1997). Differences in atmospheric models did not seem to affect, however, the results as the shares of the total impact differed by less than 3%. In Europe, Huijbregts et al. (Huijbregts et al., 2000), Potting et al. (Potting et al., 1998) and Van Zelm et al (van Zelm et al., 2007) used different atmospheric and receiving environment methods and/or models. Nevertheless, the SO₂ contribution from our CFs (29%) is situated between the respective shares from Huijbregts et al (and Potting et al.) (36%) and Van Zelm et al. (21%). The $\pm 7\%$ discrepancy is approximately reported evenly in the other pollutants contribution. Hayashi et al. (Hayashi et al., 2004) relied on a different receiving environment chemical indicator; i.e. the change in soil aluminum concentration instead of H⁺ concentration. The endpoint level of Hayashi et al. also evaluates a different endpoint indicator; the net primary production instead of the loss of biodiversity.

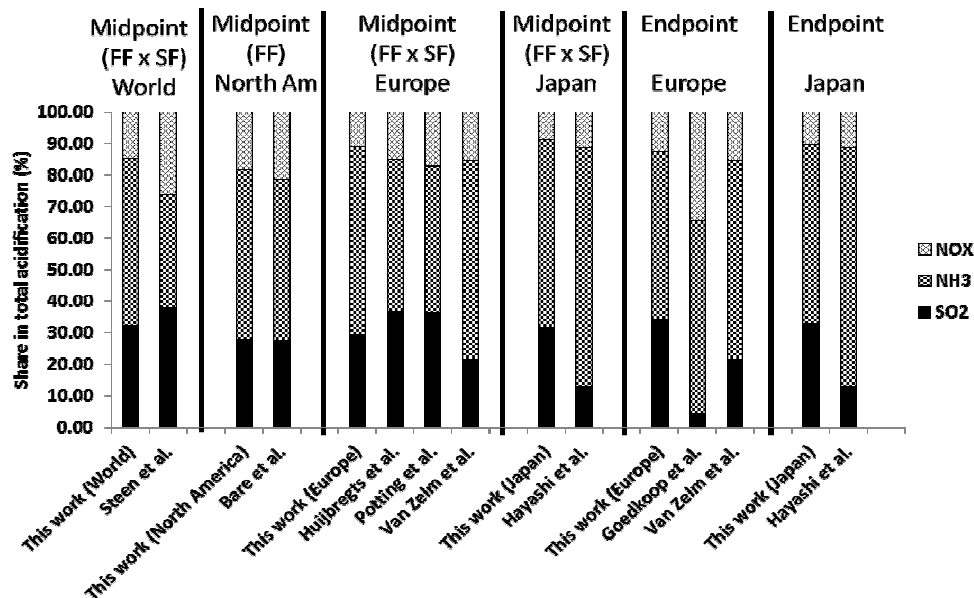


Figure 6-5: Comparison of the contributions of NO_x, NH₃ and SO₂ to the impact score when 1 kg of each substance is emitted with existing CFs. (FF = Atmospheric fate factors, SF = Receiving environment sensitivity factors)

CHAPITRE 7 DÉVELOPPEMENT DE FACTEURS DE CARACTÉRISATION RÉGIONALISÉS, PROBLÈMES ET DOMMAGES, À L'ÉCHELLE PLANÉTAIRE POUR L'ACIDIFICATION AQUATIQUE

Cette section est centrée autour du manuscrit intitulé « *Uncertainty and spatial variability in characterization factors for aquatic acidification at the global scale* » (section 7.3) soumis à la revue International Journal of Life Cycle Assessment (soumis le 12 novembre 2012).

7.1 Présentation du troisième manuscrit

Le manuscrit développe des FCs pour l'acidification aquatique. Ce manuscrit incorpore les facteurs de devenir atmosphérique développés (Chapitre 4). Il propose également un modèle d'évaluation des facteurs de devenir des milieux récepteurs permettant de lier la déposition atmosphérique à une diminution de pH dans les lacs partout à travers le monde. Il propose également d'évaluer des facteurs d'effet, à partir des résultats d'un modèle de régression de la richesse des espèces de poissons dans les lacs, afin de calculer des FCs dommages pour l'acidification aquatique. Une fois ces facteurs calculés, une série d'analyse est effectuée permettant de répondre aux questions suivantes : Quelle est la variabilité spatiale des FCs et quel facteur (i.e. facteur de devenir atmosphérique, facteur de sensibilité et/ou facteur d'effet) est principalement responsable de cette variabilité? Quelle est l'incertitude des FCs et quel facteur est principalement responsable de cette incertitude? Considérant la variabilité spatiale et l'incertitude, quelle devrait être la dénomination du FC de type problème?

7.2 Chaîne de cause à effet pour l'acidification aquatique

La figure 7-1 présente la chaîne de cause à effet développée pour l'acidification aquatique. Cette chaîne de cause à effet est basée sur les processus environnementaux explicités à la section 1.1 et est utilisée dans le cadre du manuscrit présenté à la section 7.3.

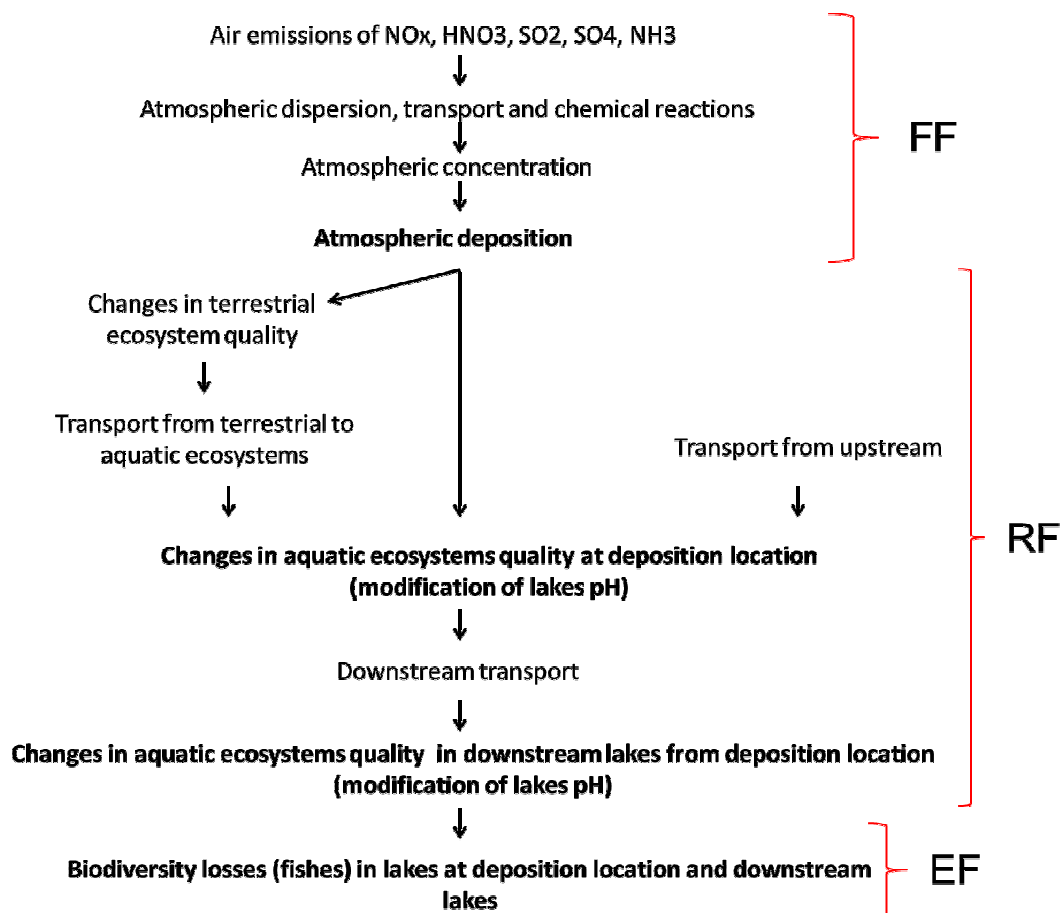


Figure 7-1 : Développement d'une chaîne de cause à effet pour l'acidification aquatique

7.3 “Uncertainty and spatial variability in characterization factors for aquatic acidification at the global scale”

7.3.1 Abstract

Purpose: Characterization factors (CFs) quantifying the potential impact of acidifying emissions on inland aquatic environments in life cycle assessment (LCA), are typically available on a generic level. Lack of spatially-explicit CFs implies that the impacts of aquatic acidification are

typically disregarded in LCA. This paper presents a novel approach allowing development of spatially differentiated CF at a global scale for the aquatic acidification impact category.

Methods: We defined CFs as the change in relative loss of lake fish species richness due to a change in emission of acidifying chemicals. The characterization model includes the modeling steps linking emission to change in atmospheric acid deposition (atmospheric fate factor) which lead to change in lake H^+ concentration (receiving environment fate factor) to loss in relative fish species richness (effect factor). We also evaluated the significance of each factor (i.e. atmospheric fate, receiving environment fate and effects) to the overall CFs spatial variability and uncertainty.

Results and discussion: The highest CFs were found for emissions occurring in the Canadian and American Great Lakes region as well as in the Scandinavian region. The CFs spatial variability ranged over 8, 9 and 10 orders of magnitude for NO_x , SO_2 and NH_3 emissions, respectively. We found that the aquatic receiving environment fate factor is the dominant contributor to the overall spatial variability in the CFs since both combination of atmospheric and receiving environment fates contributed to over 7 (NO_x , SO_2) and 8 (NH_3) orders of magnitude. Atmospheric fate alone contributed to variability by one order of magnitude. The statistical uncertainty analysis showed that effect factors contributed to 98% of the total uncertainty. Atmospheric fate and receiving environment fate factors shares amounted to 1% each.

Conclusion: The resulting characterization model and factors enables a consistent evaluation of spatially explicit acidifying emissions impacts at the global scale.

7.3.2 Introduction

Inland surface water acidification has been recognized as a major environmental problem in many parts of Europe and North America for several decades (Skjelkvale et al. 2005). Surface water acidification results from atmospheric emissions of acidifying substances (i.e. nitrogen oxides (NO_x , i.e. NO , NO_2 , NO_3 and HNO_2), ammonia (NH_3) and sulphur dioxide (SO_2)) and their subsequent direct or indirect deposition on aquatic environment. The latter stems from deposition on terrestrial environment that travel to aquatic environments by means of runoff or through underground water (Jeffries and Ouimet 2004). Acid deposits may decrease the pH of surface water. For nearly every species, a pH optimum exists and deviation from this optimum

affects the aquatic ecosystem species (e.g., fishes, aquatic plants and aquatic insects) richness (Jeffries and Ouimet 2004).

Life cycle assessment (LCA) typically evaluates the potential impacts of acidifying emissions on inland surface water by using generic characterization factors (CFs) (Heijungs et al. 1992; Humbert et al. 2004; Guinée et al. 2001). The use of generic CFs, however, may invalidate the conclusions drawn from impact assessment (Potting and Hauschild 2006). Without spatially-explicit midpoint or endpoint CFs, impacts of aquatic acidification are typically disregarded in LCA (European Commission-Joint Research Centre 2011). Outside of LCA, potential impacts of lake acidification are typically evaluated with critical loads (Posch 2004) which are defined as a “quantitative estimate of an exposure to one or more pollutants below which significant harmful effects on specified sensitive elements of the environment do not occur, according to present knowledge” (Kuylensstierna et al. 2001). Typical critical load calculations are based on surface water modeling, which rely on current and variable surface water input data. An alternative is to use soil modeling that captures key long-term interactions in aquatic environments (Rapp and Bishop 2003; Downing et al. 1993). In LCA however, the question as to whether or not it is appropriate to use critical load approaches is still open to debate since they are found on a side track of the cause-effect chain to damages (European Commission-Joint Research Centre 2011).

Furthermore, uncertainties are not currently considered in aquatic acidification CFs calculation (Finnveden et al. 2009). It has, been recognised however, that uncertainty evaluation is necessary to provide support in LCA results interpretation (Finnveden et al. 2009).

This paper aims to i) develop a characterization model and spatially-explicit CFs evaluating aquatic environment potential impacts at a global scale by combining three assessment steps: atmospheric fate, receiving environment fate and ecological effects and ii) evaluate the contribution of these assessment steps to overall CFs spatial variability and uncertainty.

7.3.3 Method

7.3.3.1 Characterisation factors

CFs for aquatic acidification (eq 7.1) assesses the potential impacts of acidifying emissions to lakes. CFs are defined as the change in potentially disappeared fraction of fish species (PDF) in lake(s) k due to a change in atmospheric deposition on the receiving environments in grid g (i.e.

both soils and aquatic environments) following a marginal change in atmospheric emissions of acidifying substance p at the source location i . The endpoint CF can be subdivided into an atmospheric fate factor (FF), a receiving environment fate factor (RF) and an effect factor (EF). CFs are expressed in $[\text{m}^2 \times \text{yr} \times \text{kg}_{\text{emitted}}^{-1}]$ and were calculated for 13104 $2^\circ \times 2.5^\circ$ spatial resolution emissions grids.

$$CF_{i,p} = \sum_g \left(FF_{i,g,p} \times \sum_g \left(RF_{g,k,p} \times EF_k \right) \right) \quad (7.1)$$

7.3.3.2 Atmospheric fate factors

The atmospheric fate factor (eq 7.2; $[\text{keq} \times \text{kg}_{\text{emitted}}^{-1}]$) describes the link between the change in pollutant emission in grid cell i of acidifying pollutant p to the change in acid deposition on grid g . Atmospheric fate factors were taken from Roy et al. (Roy et al. 2012b) who calculated worldwide source receptor matrices (SRMs) whose elements are spatially explicit $2^\circ \times 2.5^\circ$ atmospheric fate factors. They based their calculations on the GEOS-Chem global tropospheric chemistry model (Bey et al. 2001). GEOS-Chem is a global 3-D model of tropospheric chemistry driven by assimilated meteorological observations from the Goddard Earth Observing System (GEOS) of the NASA Data Assimilation Office (Bey et al. 2001). Roy et al. (Roy et al. 2012b) used the yearly averaged results from a GEOS-Chem $2^\circ \times 2.5^\circ$ grid spatial resolution simulation for the 2005 reference year; the year 2005 being representative of the average from 1961 to 1990 according to the National Oceanic and Atmospheric Administration's National Climatic Data Center (NOAA National Climatic Data Center 2005).

$$FF_{i,g,p} = \frac{dD_{g,p}}{dE_{i,p}} \quad (7.2)$$

Where $D_{g,p}$ $[\text{keq} \times \text{yr}^{-1}]$ is the pollutant p deposition in receiving environment g related to emission $E_{i,p}$ $[\text{kg NO}_x, \text{NH}_3 \text{ or } \text{SO}_{2\text{emitted}} \times \text{yr}^{-1}]$ at location (air grid cell) i .

7.3.3.3 Receiving environment fate factors

The receiving environment fate factors (RF (eq 7.3); [$\text{mol L}^{-1} \times \text{m}^2 \times \text{keq}^{-1} \text{ yr}$]) evaluate the change in H^+ concentration in lake(s) k according to a change in deposition of pollutant p at location g . RFs were calculated, for every receiving environments (grids g), at a worldwide spatial resolution of $0.5^\circ \times 0.5^\circ$. We introduced changes in pollutant deposition that follow a relative 10% increase in emissions which is commonly used in LCIA studies (Huijbregts et al. 2000; Krewitt et al. 2001; Potting et al. 1998).

$$RF_{i,g,p} = \frac{\sum_k \partial C_{g,k} \times A_k}{\partial D_{g,p}} \approx \frac{\sum_k \Delta C_{g,k} \times A_k}{\Delta D_{g,p}} \quad (7.3)$$

Where $C_{g,k}$ [$\text{mol H}^+ \times \text{L}^{-1}$] is the H^+ concentration in lake k , due to deposition at location g ($D_{g,p}$) and A_k the lake k area [m^2]. The lake areas were obtained from the “Global Lakes and Wetlands database” (GLWD) level 1 (lake area $\geq 50 \text{ km}^2$) and 2 ($50 \text{ km}^2 > \text{lake area} \geq 0.1 \text{ km}^2$) (Lehner and Döll 2004). Since the lakes areas were geo-referenced at their centers and could encompass many $0.5^\circ \times 0.5^\circ$ grids, we allocated each lake area to their respective $0.5^\circ \times 0.5^\circ$ grids using a geographic information system (GIS) software (ArcMap 9.3).

To calculate $C_{g,k}$, each grid g (spatial resolution $0.5^\circ \times 0.5^\circ$) was modeled as continuously stirred tank reactor (CSTR) operating under steady-state conditions ($dC/dt = 0$). This implies a homogeneous H^+ concentration within the grid. We performed a mass balance for each grid g in which we neglected the biogeochemical reactions as they are believed to be insignificant over a long period of time in comparison to soil watershed inputs (Jeffries and Ouimet 2004). $C_{g,k}$ is obtained by solving eq. 7.4.

$$C_{g,k} = \left[\frac{\left(C_{a,g} \times P_{a,g} \times LA_g \right) + \left(C_{t,g} \times R_{t,g} \times TA_g \right) + \left(C_{g-1} \times Q_{g-1} \right)}{\left(Q_{g+1} \right)} \right] \quad (7.4)$$

Where $C_{g,k}$ [$\text{mol H}^+ \text{ L}^{-1}$] is the H^+ water concentration in grid g . $C_{a,g}$ [$\text{mol H}^+ \text{ L}^{-1}$] is the atmospheric deposits H^+ concentration, $P_{a,g}$ [dm^2/yr] is the precipitation levels, LA_g [dm^2] the lakes total area in grid g , $C_{t,g}$ [$\text{mol H}^+ \text{ L}^{-1}$] the grid g soil solution H^+ concentration travelling to surface waters, $R_{t,g}$ [dm/yr] the runoff from soils in grid g , TA_g [dm^2] the terrestrial area of grid g , C_{g-1} [$\text{mol H}^+ \text{ L}^{-1}$] the upstream H^+ water concentration, Q_{g-1} [L/yr] the input (upstream) flow

and Q_{g+1} [L/yr] the output (downstream) flow. Derivation of each parameter is detailed in the Annexe 5.

7.3.3.4 Effect factors

The effect factor (EF; $[(\text{mol L}^{-1})^{-1}]$) describes the change in potentially disappeared fraction of fish species (PDF) per unit of change in H^+ concentration in lake k . Following Payet (Payet, 2006), the effect factor was calculated per eq 7.5:

$$EF_k = \frac{dPDF_k}{dC_k} = -\frac{1}{SR_{Ck}} \times \frac{dSR_k}{dC_k} = -\frac{1}{SR_{Ck}} \times \left[\frac{\exp(a \times (-\log_{10}(C_k))^2 + b \times -\log_{10}(C_k) + c)}{\times \left(\frac{-1}{C_k \times \ln(10)} \times [2 \times a \times -\log_{10}(C_k)] + [b] \right)} \right] \quad (7.5)$$

Where SR_{ck} [dimensionless] is lake k fish species richness at the background concentration C_k , a, b and c [dimensionless] are regression coefficients. The coefficients a and b have the ability to shift the curve left or right of the species richness optimum. They can also, like coefficient c , increase or decrease the amplitude of the curve at the optimum.

PDF was evaluated from the loss of spatially-differentiated fish species richness (SR), the latter being evaluated from H^+ concentration and species richness regressions from Amarasinghe et Welcomme (Azevedo et al. 2012). Regressions are available in the *Electronic supplement 3* for several regions: North America, tropical America, temperate Europe and Asia, Africa and tropical Asia, altogether representing 62% of total numbers of lakes in the world. Regressions coefficient for the remaining 38% were approximated by other regions coefficients based on similar Köppen-Geiger climate conditions (Kottek et al. 2006).

7.3.3.5 Region specific characterization factors

Since the specific source location of the input and output processes compiled in the LCI phase are seldom known (Finnveden et al. 2009), we derived emission weighted CFs at three additional resolution levels: country, continent and world, the latter considered as the global default CF. The ArcMap 9.3 geographic information system (GIS) software was used to determine country and continental areas.

7.3.3.6 Regression analysis

The influence of the FFs, RFs and EFs on the spatial variability of the CFs was evaluated for each $2^\circ \times 2.5^\circ$ grid via regression analysis. On a log scale, the spatial variability in $\sum \text{FF}$ and $\sum \text{FF} \times \text{RF}$ were compared to their endpoint CFs per pollutant. The following statistics were considered for the regression analysis: the slope of the log-linear regression, the coefficient of determination (R^2) and the residual sum of squares (RSS). Correlation between the different factors would be expressed by a slope close to one, a high coefficient of determination and low residual sum of squares.

7.3.3.7 Regression analysis

The influence of FF, RF and EF on CFs statistical uncertainty was evaluated by Monte Carlo simulation. Simulation was carried out in Matlab (v 7.10). The uncertainty in each FF, RF and EF was calculated from lognormal distributions. Further details are provided in the *Electronic supplement 4*. By sampling 1000 values for FF, RF and EF, we calculated 1000 CFs for each emitting grid, indicating the uncertainty in the grid-specific CF values.

7.3.4 Results

7.3.4.1 Characterisation factors results

Figure 7-2 shows the spatially differentiated CFs (at $2^\circ \times 2.5^\circ$) for the three acidifying pollutants considered. The highest CFs were found in the Great lakes regions of North America and in the Scandinavian region of Europe. The boxplot distribution shows that the median CF of SO_2 is higher ($72.5 \text{ m}^2 \times \text{yr} \times \text{kg}_{\text{emitted}}^{-1}$) than the median CF of NH_3 ($9.0 \text{ m}^2 \times \text{yr} \times \text{kg}_{\text{emitted}}^{-1}$) or NO_x ($3.5 \text{ m}^2 \times \text{yr} \times \text{kg}_{\text{emitted}}^{-1}$). CFs range over 8, 9 and 10 orders of magnitude for NO_x , SO_2 and NH_3 emissions, respectively. The spatial variability of CFs of a given pollutant is a number of magnitude higher than the variability between pollutants. Grid specific as well as global, continental and country averaged CFs are available in the Annexe 5. An analysis of the transcontinental deposition contributions to potential impacts are provided in section 7.4.

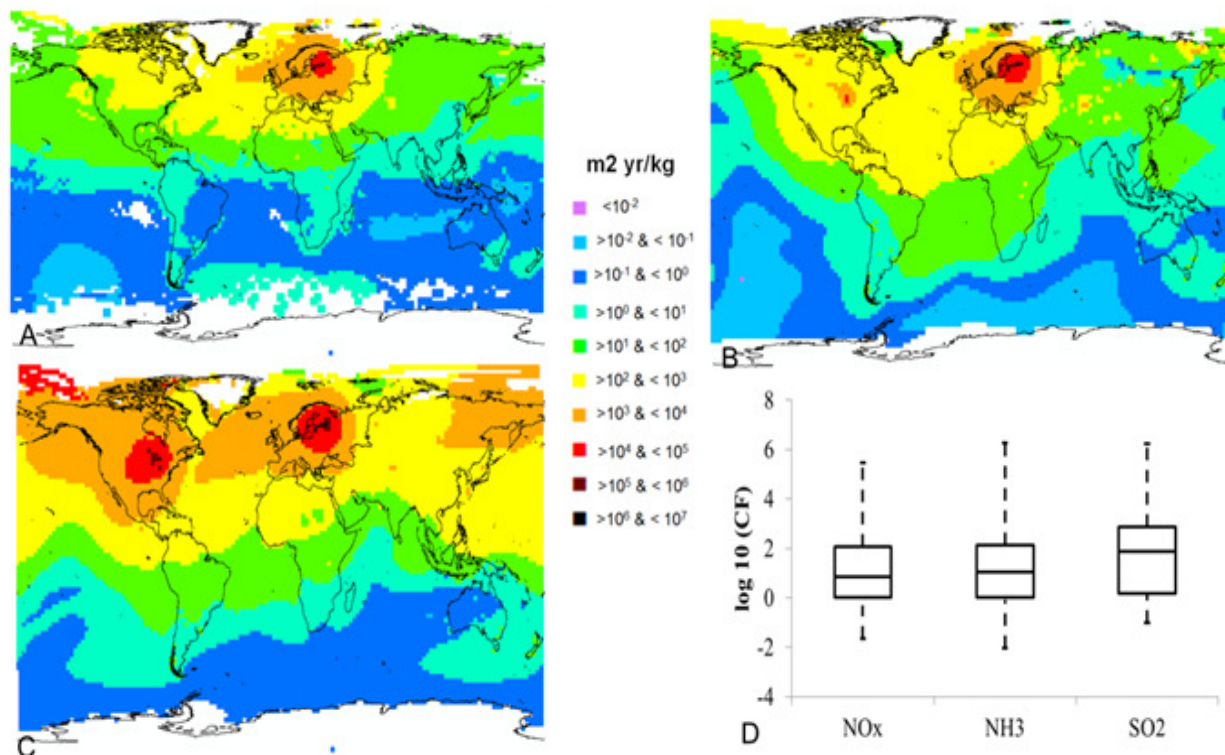


Figure 7-2: Worldwide spatially differentiated endpoint characterization factors for aquatic acidification at 2° x 2.5° grid resolution for emissions of A) NO_x, B) NH₃ and C) SO₂. D) Box plot showing the distribution of the calculated 13104 CFs. The edge of the box represents the 25th -75th percentiles, the line in the box represents the median and the whiskers represent the minimum and maximum of the distribution

7.3.4.2 Regression analysis

Tableau 7. 1 presents the results of the regression analysis. They showed an explained variance of less than 0.09 for $\sum FF$ towards CF. The explained variance of $\sum FF \times RF$ towards CF results is an explained variance between 0.76 and 0.78 with slopes of the linear regression that approximate 1. The stronger correlation between $\sum FF \times RF$ and endpoint CFs is also confirmed by the relatively low residual sum of squares of the regressions.

Tableau 7.1: Regression analysis of the spatial variability between endpoint characterization factors (i.e. $\sum FF \times RF \times EF$) with both atmospheric fate ($\sum FF$) and atmospheric fate-receiving environment fate ($\sum FF \times RF$) per emitted pollutants

	Equation of linear regression	Coefficient of correlation (R^2)	Residual sum of squares (RSS)
$\sum FF$ and CF (i.e. $\sum FF \times RF \times EF$)			
NO _x	$\log (CF) = 2.88 \log (\sum FF) + 24.98$	0.09	6.54×10^3
NH ₃	$\log (CF) = -2.20 \log (\sum FF) - 16.50$	0.03	8.12×10^3
SO ₂	$\log (CF) = 0.02 \log (\sum FF) + 1.84$	0.00	1.06×10^6
$\sum FF \times RF$ and CF (i.e. $\sum FF \times RF \times EF$)			
NO _x	$\log (CF) = 1.14 \log (\sum FF \times RF) + 6.25$	0.76	3.04×10^3
NH ₃	$\log (CF) = 1.12 \log (\sum FF \times RF) + 6.14$	0.77	3.22×10^3
SO ₂	$\log (CF) = 1.37 \log (\sum FF \times RF) + 7.74$	0.78	4.09×10^3

7.3.4.3 Uncertainty

The results in Figure 7-3 showed that, within a 95% confidence interval, the ratios between Monte Carlo varied and original $\sum FF$, $\sum FF \times SF$ and CF were found inside a $10^{\pm 0.1}$ (0.79-1.26), $10^{\pm 0.3}$ (0.50-2.0) and $10^{\pm 2.0}$ (0.01-100) interval, respectively.

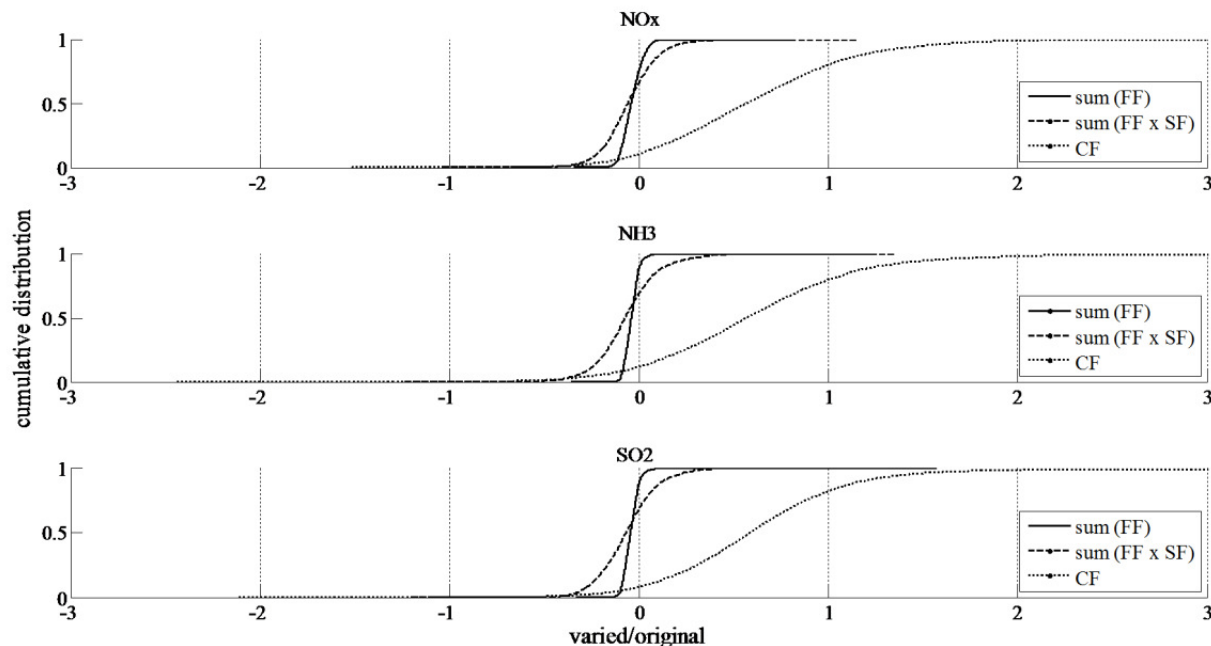


Figure 7-3: log 10 of the ratio between the Monte Carlo varied and original $\sum FF$, $\sum FF \times SF$ and CF (X-axis) for the cumulative distribution of $2^\circ \times 2.5^\circ$ grids (Y-axis) for emissions of NO_x, NH₃ and SO₂.

7.3.5 Discussion

This study provides spatially-explicit CFs for aquatic acidification at a world scale relying on spatially explicit atmospheric fate, receiving environment fate and effects modeling. This global characterization model and related CFs overcome the limitations of current impact assessment methods allowing to consistently assess and discriminate emissions occurring on different geographic areas with the same characterization model.

The regression analysis showed that addition of RF was crucial for the evaluation of CFs spatial variability. The uncertainty analysis showed that addition of each new modeling step to calculate the respective intermediary parameters increased the uncertainty. However, EF is the major contributor to the overall CF uncertainty (98% of the total uncertainty while atmospheric and receiving environment fates contributed to 1% each). We thus recommend that trade-offs between environmental relevance and uncertainty, incorporate both atmospheric and receiving environment fates. It is undisputed, however, that effect factors are required to calculate endpoint CFs. Endpoints reveal information on the actual damage to ecosystems and allow meaningful aggregation of the consequences of different impacts.

7.3.5.1 Limitations

Several limitations due to modeling choices have been identified. The following addresses these limitations. Firstly, we only evaluated the potential impacts of lake acidification neglecting the acidification of other aquatic environments such as rivers. We neglected them as Amarasinghe and Welcomme's H^+ concentration and species richness regressions were only valid for natural lakes.

Secondly, the modeling of CSTR for lakes RF calculation remains a simplified estimation as lakes pH are known to be highly heterogeneous. Indeed, a loss of 2 to 3 pH scale units between surface and bottom of the lake (10-15 m) are common (Araoye, 2009; Wang & Chen, 1990). We also neglected the biogeochemical reactions as they are believed to be insignificant over a long period of time in comparison to soil watershed inputs (Jeffries & Ouimet, 2004). Consequently, evaluation of lakes pH may not be accurate. To evaluate the accuracy of our estimation, we compared our calculated pH with estimated average lake pH from field measurements of 150 lakes in Canada (Annexe 5). Comparison showed that 74% of the simulated pH values were

inside a $\pm 10\%$ interval of the estimated mean. This result was deemed satisfactory as the simulated pH relied on simulated soil pH whose values were accurate at $\pm 25\%$ (Roy, Deschênes, et al., 2012). We must also consider the fact that field measurements were not at steady-state while our simulated pH values were.

Thirdly, seasonal or monthly variations in input parameters may be important and would be more appropriate than yearly averaged parameters. For example, seasonal variability in lakes pH was evaluated at $\pm 50\%$ (Driscoll & Van Dreaseon, 1993). However, since LCA generally does not provide information on the time when emissions occur, the use of an annual average is in line with the scope of the study.

Fourthly, EF's regressions showed poor correlations (0.01 to 0.42) when linking lake H⁺ concentration to fishes species richness. This can be explained by numerous parameters that influences species richness such as temperature, lake area, depth, altitude and pH (Amarasinghe & Welcomme, 2002). As such, used regressions represent tendencies rather than correlations. We also considered that there is no loss of fish species if the pH is above the optimum, i.e. the pH at which species richness is highest. However, specific species might be affected by changes in pH above the optimum. Therefore our approach does not allow the evaluation of acidifying substances effects on specific species. It could also be argued that the complex sensitivity of lakes is not only represented by fish species.

Finally, the quantification of what a “marginal change” is, is still under discussion. Several authors (Huijbregts et al., 2000; Krewitt et al., 2001; Potting et al., 1998) used a +10% variation while others tried a combination of different values with a maximum at 50% (Seppälä et al., 2006; van Zelm et al., 2007) when evaluating terrestrial acidification potential impacts. Similarly, Roy et al. (Roy, Deschênes, et al., 2012) tested the consequences of acid deposits changes by increments of 1, 5 and 10%, with the same soil model used in this study to calculate $C_{g,k}$, and found a quasi-linear relationship between registered pH at 5% and 10% increments. Without further counter indications, we considered a 10% increment as acceptable.

7.3.5.2 Comparison to other studies

We compared our European CFs with the CFs used by European life cycle impact assessment methods on the basis of potential impact contribution for the emission of 1 kg of each substance. Results from this comparison (Tableau 7.2) showed that the generic CFs have the same

contribution per pollutant as our $\sum FF$. Discrepancies between calculated $\sum FF \times SF$ or CF and the generic CF can be explained by the latter's lack of receiving environment fate and effect modeling and/or lack of spatial differentiation.

Tableau 7.2: Comparison of the contribution to the total impact score when 1 kg of each substance are emitted

	Contribution[%]			
	Generic CFs from European methods	This study		
		$\sum FF$	$\sum FF \times RF$	CF ($\sum FF \times RF \times EF$)
NO _x	20%	20%	19%	19%
NH ₃	52%	52%	31%	29%
SO ₂	28%	28%	50%	52%

7.3.6 Conclusion

The characterization factors provided in our study enables the evaluation of the acidifying emissions impacts on spatially explicit relative fishes species richness at the global scale. This implies that the same emission, occurring at two different locations, can result in different impacts. Today, database providers, such as ecoinvent (v3) (Weidema B. P. et al., 2012), are developing regional modules covering different regions of the world and addressing the geographical locations of emissions. In the event that the emission location is unknown or guessed, region-specific CFs on a country or continental scale or global default CFs may be used; allowing, at the same time evaluation of uncertainty inherited from lack of spatial information.

Acknowledgements

The CIRAIG would like to thank its industrial partners for their financial support: ArcelorMittal, Bombardier, Bell Canada, Cascades, Eco Entreprises Québec, RECYC-QUÉBEC, Groupe EDF, Gaz de France, Hydro-Québec, Johnson & Johnson, LVMH, Michelin, Mouvement des caisses Desjardins, Nestlé, Rio Tinto Alcan, RONA, SAQ, Solvay, Total, Umicore, and Veolia Environment.

7.4 Résultats complémentaires

7.4.1 Significance of transboundary transport

Much like terrestrial acidification, the importance of transboundary deposition on the overall impact was assessed. Results shown in Figure 7-4 illustrate the importance of transboundary deposition as they represent, typically, 44 to 58% of the total impact.

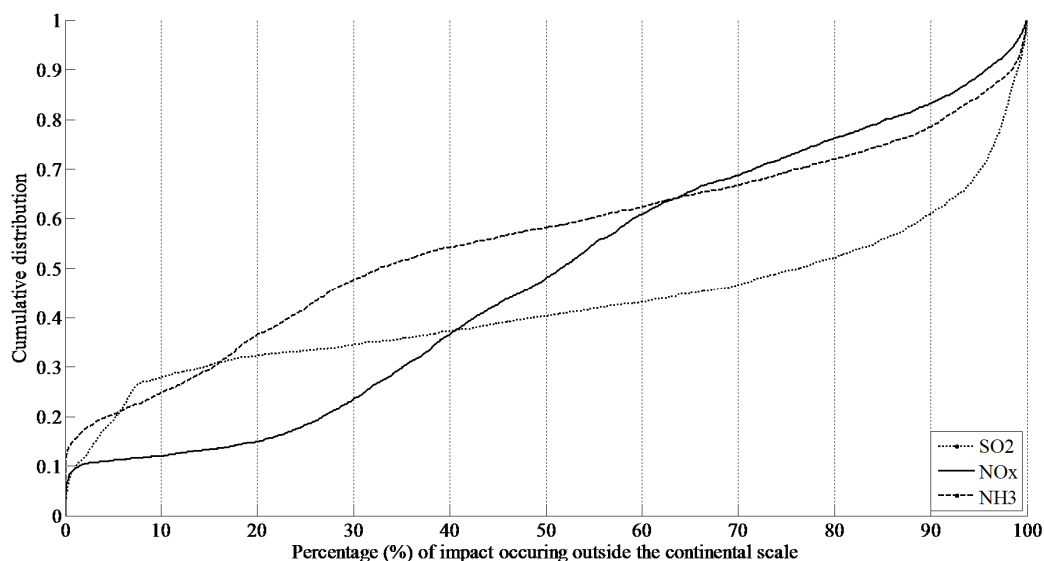


Figure 7-4: Percentage of transcontinental potential impacts of (a) NO_x, (b) NH₃ and (c) SO₂ continental emissions

7.4.2 Region-specific characterization factors

The results in Figure 7-5 showed that, on average, the ratio between a $2^\circ \times 2.5^\circ$ CF within a given spatial resolution and its coarser resolution CF is between 0.40-0.86, 1.37-1.64 and 1.03-1.17 for the global, continental and country resolutions, respectively. This means that $2^\circ \times 2.5^\circ$ CFs found within countries, for example, will be, on average, 1.03 to 1.17 times higher than the country CFs. It is also demonstrated that 69 to 79%, 16 to 20% and 13 to 17% of the $2^\circ \times 2.5^\circ$ CFs within the global, continental and country spatial resolutions, respectively, may vary by more than one order of magnitude (Figure 7-5, $-1 > \log_{10}(\text{ratio}) < 1$) as compared to the specified coarser spatial resolution CFs.

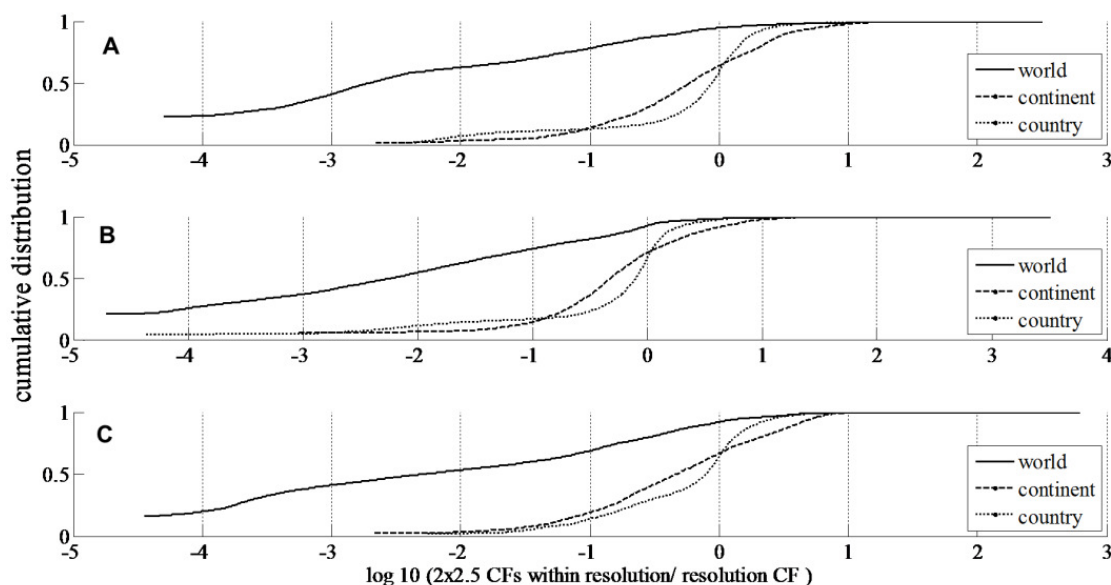


Figure 7-5: Cumulative distribution of the log 10 of the ratio between the $2^\circ \times 2.5^\circ$ CFs found within the global, continental or country level resolution and the global, continental or country level resolution CFs (X-axis) for emissions of a) NO_x , b) NH_3 and c) SO_2

CHAPITRE 8 DISCUSSION GÉNÉRALE : ÉVALUATION DES RETOMBÉS DE L'APPLICATION DES FACTEURS DE CARACTÉRISATION RÉGIONALISÉS À L'ÉCHELLE PLANÉTAIRE DANS UNE ANALYSE DE CYCLE DE VIE

Cette section applique les FCs de l'acidification terrestre et aquatique développés dans le cadre de cette thèse dans une étude de cas ACV afin de mettre en lumière l'apport et/ou les limites inhérents des FCs générés.

8.1 Mise en contexte

Le but de cette étude est de mettre en évidence, à l'aide d'un exemple, l'apport et/ou les limites inhérents des FCs générés face à l'état de l'art en ACV. Cet exemple permet de mettre en lumière:

- L'évaluation régionalisée des impacts de type dommage de l'acidification aquatique.
- La comparaison des impacts provenant de différents continents et/ou pays.
- La capacité de délocaliser les lieux d'émissions des divers processus ACV représentatifs d'une économie globale.
- L'évaluation des conclusions d'une étude ACV en considérant l'incertitude.

L'exemple est basé sur une version mise à jour, par le Dr Cécile Bulle, de l'exemple provenant du livre « Analyse du cycle de vie : comprendre et réaliser un éco-bilan » (Jolliet et al., 2005).

8.2 Méthode

8.2.1 Définition des objectifs et du champ d'étude

L'objectif de cette étude est de comparer les impacts potentiels liés au cycle de vie de blocs avant faits de différents matériaux : acier, composite, aluminium et aluminium recyclé. La fonction principale du bloc avant est : tenir différentes pièces (e.g. phares, ventilateur) sur une durée de vie de l'automobile. En ce sens, l'unité fonctionnelle s'articule comme : un bloc avant de rigidité

équivalente, transporté sur la distance parcourue par l'automobile, typiquement 200 000 km. La Figure 8-1 montre les frontières du système étudié :

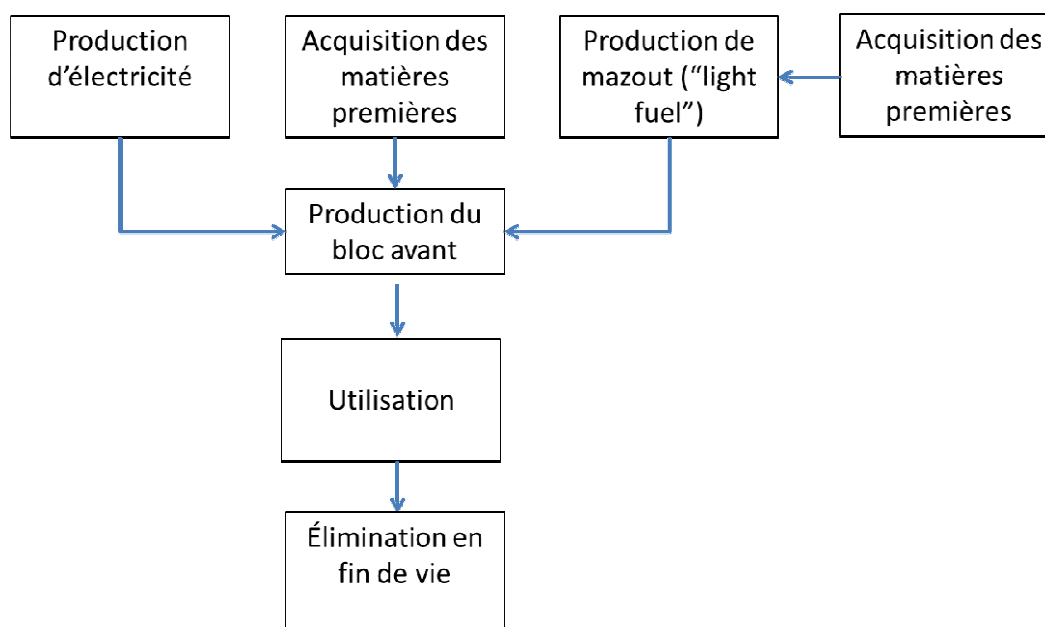


Figure 8-1: Frontière du système étudié (les flèches représentent des phases de transport)

Afin de réaliser l'étude ACV, deux scénarios ont été considérés : un scénario de base et un scénario réaliste. Dans le scénario de base, il a été considéré que le cycle de vie avait entièrement lieu dans l'un de ces endroits : quelque part dans le monde, en Europe, en Chine, au Mexique, en Argentine, au Canada et en Indonésie. Cette façon de procéder équivaut à l'état de l'art en ACV. Ce scénario a permis de comparer les impacts provenant de différents continents et/ou pays.

Le scénario réaliste évalue les impacts potentiels d'une économie globale dans laquelle le lieu de production diffère du lieu d'utilisation et/ou de fin de vie. Dans ce scénario, le lieu de production est situé soit en Europe, en Chine, au Mexique, en Argentine, au Canada ou en Indonésie. Le lieu d'utilisation et d'élimination est identique quel que soit le lieu de production; soit l'Europe. Ce scénario a permis de montrer les conséquences d'une délocalisation des lieux d'émissions de divers processus ACV (ce qui est représentatif d'une économie globale).

8.2.2 Analyse de l'inventaire

Les flux économiques reliés au cycle de vie des blocs avant ont été fournis par le Dr Cécile Bulle. Les flux élémentaires (i.e. quantité de SO₂, SO₄, NO_x et NH₃ émis) découlant de ces flux

économiques ont été quantifiés par la base de données d'inventaire Écoinvent incluse dans le logiciel ACV Simapro (v.7.3.3).

Les distances transocéaniques du scénario réaliste ont été évaluées à l'aide du calculateur internet « sea distances –voyage calculator » ("Sea Distances-Voyage Calculator," 2012). Le trajet emprunté pour le transport maritime transocéanique, définissant les FCs à utiliser, a été approximativement défini par « A year of global shipping routes mapped by GPS » (Kaluza, Kölzsch, Gastner, & Blasius, 2010). Le port le plus important de chaque pays ou continent (sur une côte appropriée) a été sélectionné comme étant le port d'entrée ou de sortie : Rotterdam (Europe), Tianjan (Chine), Vera Cruz (Mexique), Buenos Aires (Argentine), Toronto (Canada) et Jarkata (Indonésie).

8.2.3 Évaluation des impacts du cycle de vie

En fonction des flux élémentaires obtenus et des FCs développés, les impacts potentiels de l'acidification terrestre et aquatique ont été calculés au niveau problème et dommage. Ils ont été référencés comme appartenant à la nouvelle méthode d'impact mondiale : IMPACT World +.

8.2.4 Interprétation

La phase d'interprétation a considéré une analyse de contribution, une analyse de sensibilité et une analyse de l'incertitude.

L'analyse de contribution a évalué la contribution des différents processus et des polluants à l'impact total de l'acidification terrestre puis de l'acidification aquatique pour le scénario réaliste.

L'analyse de sensibilité a comparé les résultats de l'évaluation des impacts de l'acidification terrestre, du scénario de base et du scénario réaliste, avec les résultats de l'évaluation des impacts des méthodes européennes ReCIpe et IMPACT 2002+. L'impact potentiel de l'acidification aquatique n'a pas été comparé suite aux déficiences méthodologiques d'IMPACT 2002+ et de ReCIpe pour cette catégorie d'impact.

L'analyse de l'incertitude a inséré l'incertitude liée à la modélisation et à la sélection d'une échelle de résolution plus grossière dans les résultats de l'évaluation des impacts potentiels de l'acidification terrestre et aquatique pour les scénarios de base et réaliste.

8.3 Résultats

8.3.1 Analyse de l'inventaire

Le tableau A 6.1 de l'Annexe 6 présente les flux économiques reliés au cycle de vie des blocs avant en acier, en composite, en aluminium et en aluminium recyclé tel que fourni par Dr Cécile Bulle. Le tableau A 6.2 de l'Annexe 6 présente les flux économiques additionnels pour le scénario réaliste qui prend en considération les distances de transports reliées au lieu de production en Europe, en Chine, au Mexique, en Argentine, au Canada ou en Indonésie et à une phase d'utilisation et d'élimination en Europe.

Les flux élémentaires liés à chaque processus du cycle de vie sont présentés au Tableau A6.3 de l'Annexe 6.

8.3.2 Évaluation des impacts du cycle de vie

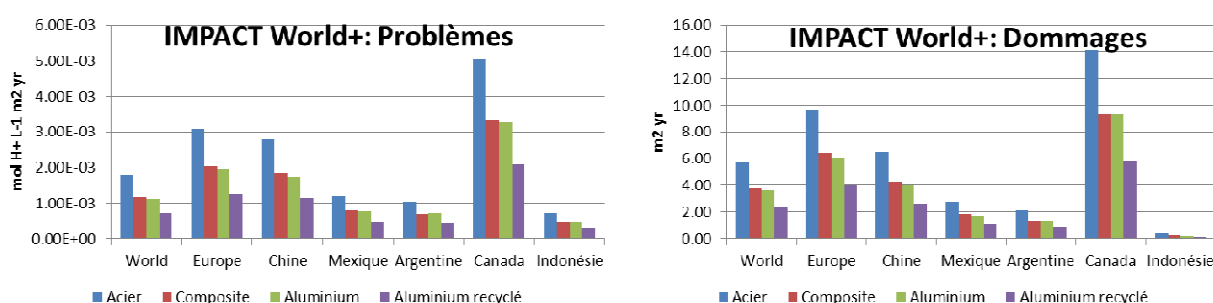
La figure 8-2 présente les résultats de l'évaluation des impacts pour le scénario de base alors que le cycle de vie complet se situe quelque part dans le monde (selon la moyenne mondiale), en Europe, en Chine, au Mexique, en Argentine, au Canada et en Indonésie.

Pour l'acidification terrestre, les résultats montrent que les impacts potentiels sur le cycle de vie sont moindres en Indonésie suivi, dans l'ordre, par l'Argentine, le Mexique, le monde, la Chine, l'Europe et le Canada. La variabilité spatiale a été évaluée à un facteur approximatif de 7 au niveau problème et d'un facteur 40 au niveau dommage entre l'Indonésie et le Canada. Cependant, quel que soit le lieu, la tendance est toujours la même : le bloc avant en aluminium recyclé est préférable, dans l'ordre, au bloc en aluminium, en composite et en acier. Il est également possible d'observer que la tendance entre les impacts problèmes et dommages pour l'Indonésie n'ont pas suivi une relation linéaire. En effet, alors que les impacts en Indonésie sont comparables à ceux de l'Argentine et du Mexique au niveau problème, les impacts dommages de l'Indonésie sont très inférieurs à ceux de ces deux pays. Ce résultat est explicable par la différence de réponses de la végétation entre ces différents pays.

Pour l'acidification aquatique, les résultats montrent que les impacts potentiels sur le cycle de vie sont moindres en Indonésie suivi, dans l'ordre, par les impacts en Argentine, en Chine, au Mexique, quelque part le monde, en Europe et au Canada. La variabilité spatiale a été évaluée à

un facteur approximatif de 370 au niveau problème et d'un facteur 1850 au niveau dommage entre l'Indonésie et le Canada. L'aluminium recyclé génère le moins d'impacts alors que l'acier en génère plus que les autres matériaux. Cependant, alors que le composite génère plus d'impact que l'aluminium en Europe, au Mexique, quelque part dans le monde et en Indonésie, la situation inverse a été observée en Chine, en Argentine et au Canada. Le composite, générant moins d'émission de SO_2 que l'aluminium lors de leur cycle de vie respectif, est favorisé lorsque l'écart entre les FCs du SO_2 et ceux du NO_x et du NH_3 s'agrandit.

Terrestre



Aquatique

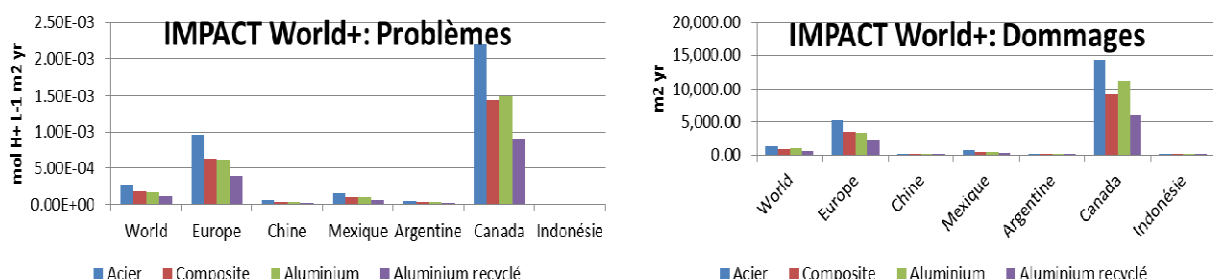


Figure 8-2: Évaluation des impacts selon les FCs développés pour l'acidification terrestre et implémentés dans la méthodologie IMPACT World + pour le scénario de base.

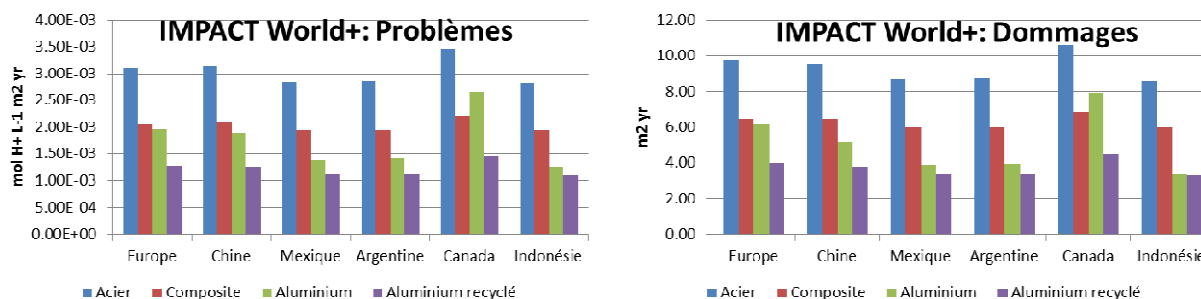
La figure 8-3 présente les résultats de l'évaluation des impacts pour le scénario « réaliste » alors que le lieu de production diffère, possiblement, du lieu d'utilisation et de fin de vie.

Pour l'acidification terrestre, les résultats montrent que les impacts potentiels sur le cycle de vie sont moindres en Indonésie suivi, dans l'ordre, par l'Argentine, le Mexique, le monde, la Chine, l'Europe et le Canada. Cependant, comparativement au scénario de base, la variabilité spatiale des impacts potentiels reliés aux différents lieux de productions est maintenant négligeable. La

variabilité spatiale diffère par un facteur approximatif de 1.5 tant au niveau problèmes qu'au niveau dommages entre l'Indonésie et le Canada. Ceci semble indiquer que les impacts du cycle de vie sont majoritairement générés par la phase d'utilisation et/ou de fin de vie. La tendance pour l'Europe, la Chine, le Mexique et l'Argentine s'avère la même : le bloc avant en aluminium recyclé est préférable, dans l'ordre, au bloc en aluminium, en panneau en composite et en acier. Cependant, cette tendance est légèrement différente pour le Canada alors que le bloc en composite s'avère plus environnemental que le bloc en aluminium. Cette situation est liée au fort taux d'émission de SO_2 lors de la phase de production de l'aluminium et au plus grand écart des FCs du SO_2 et des NO_x et NH_3 . Il a également été observé que le bloc en aluminium recyclé et le bloc en aluminium sont ex-aequo, au niveau dommage, en Indonésie.

Pour l'acidification aquatique, la variabilité spatiale des impacts potentiels reliés aux différents lieux de productions est négligeable. La variabilité spatiale diffère par un facteur approximatif de 2 tant au niveau problèmes qu'au niveau dommages entre l'Indonésie et le Canada. Le bloc avant en aluminium recyclé s'avère l'option la plus environnementale.

Terrestre



Aquatique

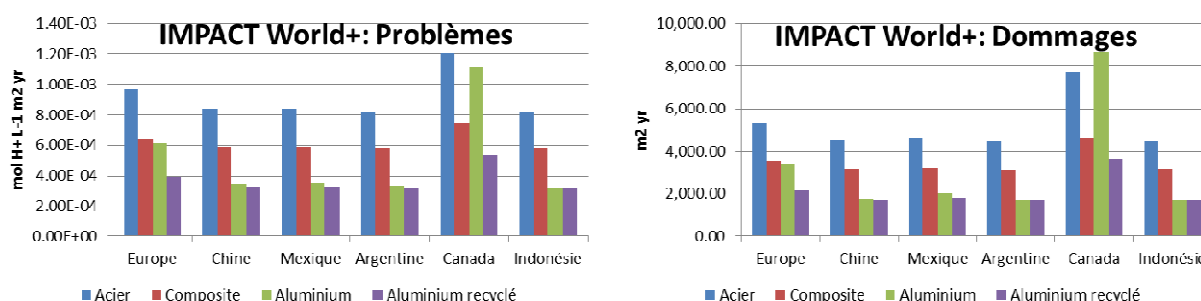


Figure 8-3: Évaluation des impacts selon les FCs développés pour l'acidification terrestre et implémentés dans la méthodologie IMPACT World + pour le scénario « réaliste ».

8.3.3 Interprétation

8.3.3.1 Analyse de contribution par processus économiques

Les résultats de l'analyse de contribution pour l'acidification terrestre du scénario réaliste sont présentés aux tableaux A6.4 à A6.9 de l'Annexe 6. La tendance des contributions aux impact potentiels problèmes reste la même selon le lieu de production : la phase d'opération contribue généralement le plus aux impacts potentiels (entre 38 et 96%) suivie, dans l'ordre, par la phase production (2.6 à 62%), le transport océanique (lorsqu'applicable; 0.14 à 2.6%), l'élimination (0.04 à 0.27%), le transport continental (à l'intérieur de l'Europe et de l'usine de production jusqu'au port lorsqu'applicable; 0.02 à 0.04%) et le transport pour l'élimination (0.01 à 0.02%). Au niveau dommages, cependant, la contribution du transport lors de l'élimination devient plus importante (0.15 à 0.35%) et s'insère après le transport océanique dans l'ordre établi précédemment. La contribution de la phase de production s'avère plus importante pour le bloc en

aluminium (19 à 62%) suivie, dans l'ordre par les blocs en aluminium recyclé (9 à 32%), en acier (6.7 à 23.6%) et en composite (4.3 à 16.2%). Puisque les impacts potentiels sont dictés généralement par la phase d'opération, un changement du lieu d'utilisation aurait une énorme incidence sur le résultat final. Les impacts potentiels seraient alors similaires à ceux observés à la figure 8.2.

Une tendance similaire est observée pour l'acidification aquatique aux tableaux A6.10 à A6.15 de l'Annexe 6.

8.3.3.2 Analyse de contribution par polluant

Les résultats des tableaux A6.16 et A6.17 de l'Annexe 6 présentent, respectivement, l'analyse de contribution pour les impacts problèmes et dommages de l'acidification terrestre, par substances émises, pour le scénario « réaliste ». Quel que soit le scénario, les émissions de SO₂ représentent le principal contributeur aux impacts potentiels (49.3 à 74.7) suivis, dans l'ordre, par les émissions de NO_x (24.8 à 43.9) de NH₃ (4.0 à 6.7) et de SO₄ (0.03 à 0.1). La tendance reste la même au niveau dommage et ce, dans des proportions similaires.

Une tendance similaire est observée pour l'acidification aquatique. Les tableaux A6.18 et A6.19 de l'Annexe 6 présentent ces résultats.

8.3.3.3 Analyse de sensibilité

L'évaluation des impacts du scénario de base (Figure 8-4) et du scénario « réaliste » (Figure 8-5) pour l'acidification terrestre mettent en évidence l'incapacité des méthodes actuelles à appliquer des FCs provenant de différents continents. Ainsi, il est impossible, avec IMPACT 2002+ ou ReCIPE de différencier, par exemple, les impacts potentiels entre le l'Europe et le Mexique. Cependant, la tendance entre les trois méthodes est équivalente : le bloc d'aluminium recyclé est favorable du point de vue environnementale suivie, respectivement, par les blocs en aluminium, en composite et en acier.

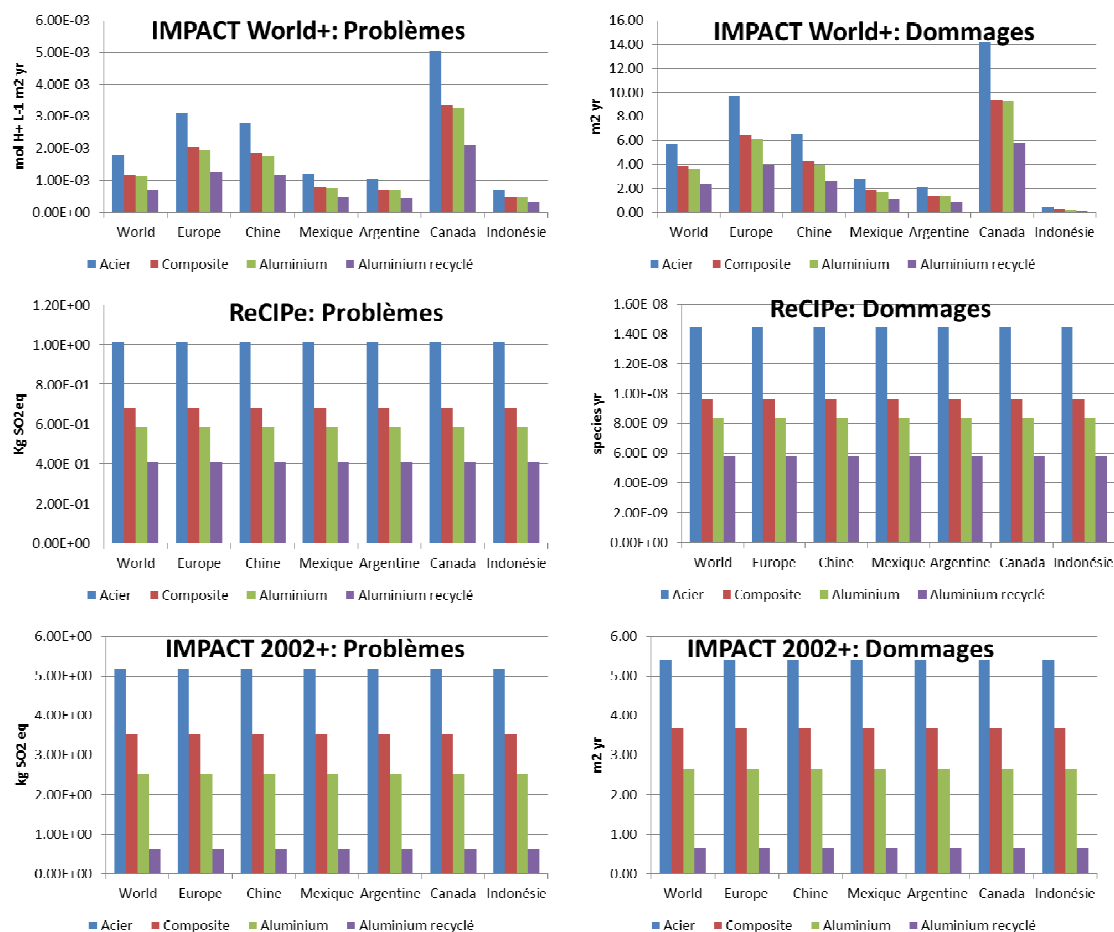


Figure 8-4: Comparaison de l'évaluation des impacts de l'acidification terrestre par différentes méthodes ACVI pour le scénario de base.

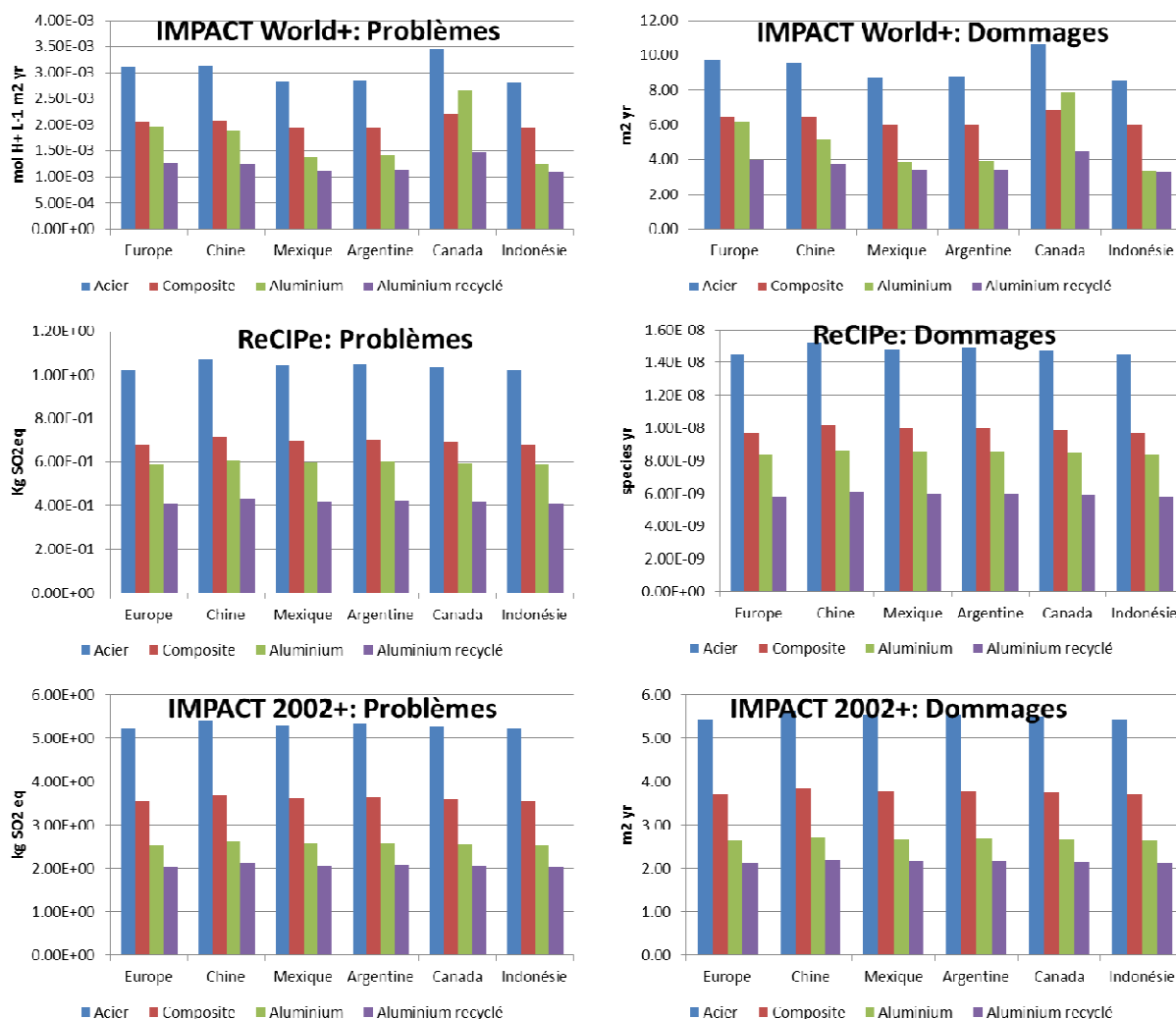


Figure 8-5: Comparaison de l'évaluation des impacts de l'acidification terrestre par différentes méthodes ACVI pour le scénario « réaliste ».

8.3.3.4 Analyse de l'incertitude

L'incertitude des FCs de l'acidification terrestre a été évaluée, au chapitre 6, à un facteur 3 et un facteur 32, respectivement pour les impacts de types problème et dommage. L'incertitude liée à l'utilisation d'une résolution grossière est de 1 ordre de grandeur pour les continents et les pays et de 2 ordres de grandeur pour le monde. Les résultats intégrant l'incertitude pour les scénarios de base et réaliste, pour l'acidification terrestre, sont présentés aux Figures 8.6 et 8.7 (en échelle log). Ainsi, il est possible d'observer que les valeurs d'incertitudes mitigent les conclusions obtenues lors de la phase d'évaluation des impacts. En effet, il est impossible de conclure, tant au

niveau problèmes qu'au niveau dommage, qu'un bloc avant prime en ce qui a trait à la performance environnementale.

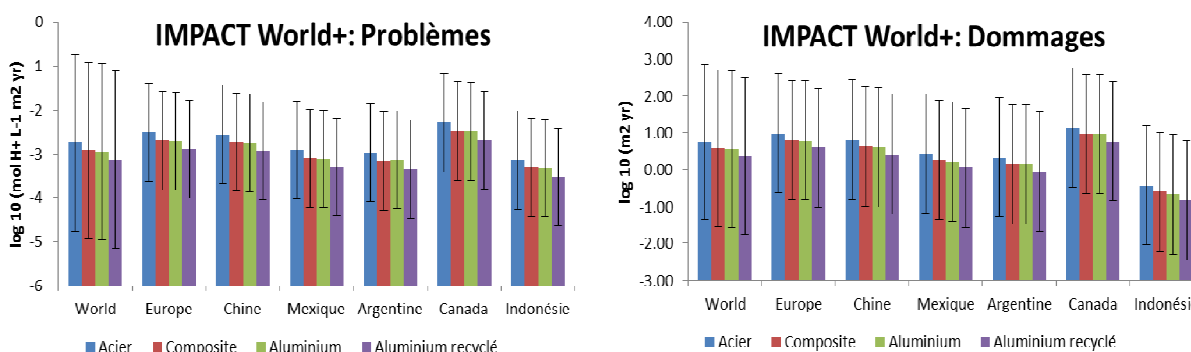


Figure 8-6: Intégration de l'incertitude dans l'évaluation des impacts de l'acidification terrestre pour le scénario de base.

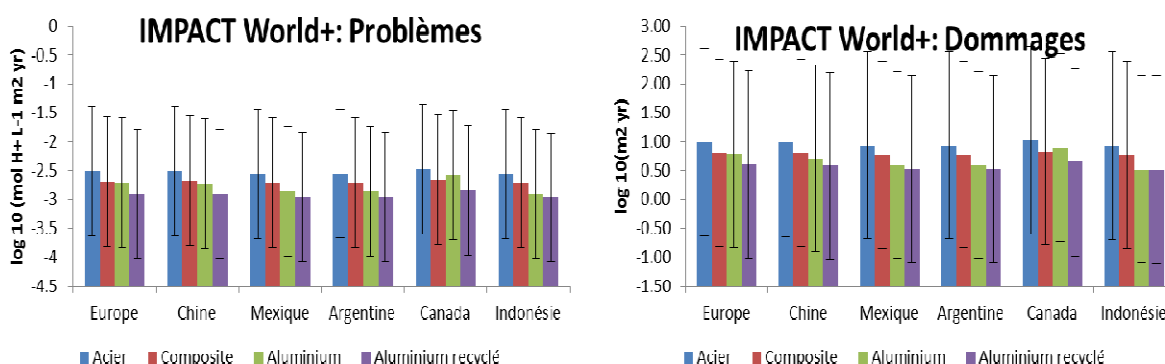


Figure 8-7: Intégration de l'incertitude dans l'évaluation des impacts de l'acidification terrestre pour le scénario « réaliste ».

L'incertitude des FCs de l'acidification aquatique a été évaluée, au chapitre 7, à un facteur 2 et un facteur 100, respectivement pour les impacts de types problème et dommage. L'incertitude liée à l'utilisation d'une résolution grossière est de 1 ordre de grandeur pour les continents et les pays et de 2 ordres de grandeur pour le monde. Les résultats intégrant l'incertitude pour les scénarios de base et réaliste, pour l'acidification aquatique, sont présentés aux figures 8.8 et 8.9 (en échelle log). Ainsi, il est possible d'observer que, tout comme dans le cas de l'acidification terrestre, les valeurs d'incertitudes mitigent les conclusions obtenues lors de la phase d'évaluation des impacts. En effet, sauf exception des impacts de type problème entre le Canada et l'Indonésie du

scénario de base, il est impossible de conclure, tant au niveau problème qu'au niveau dommage, qu'un bloc avant prime en ce qui a trait à la performance environnementale.

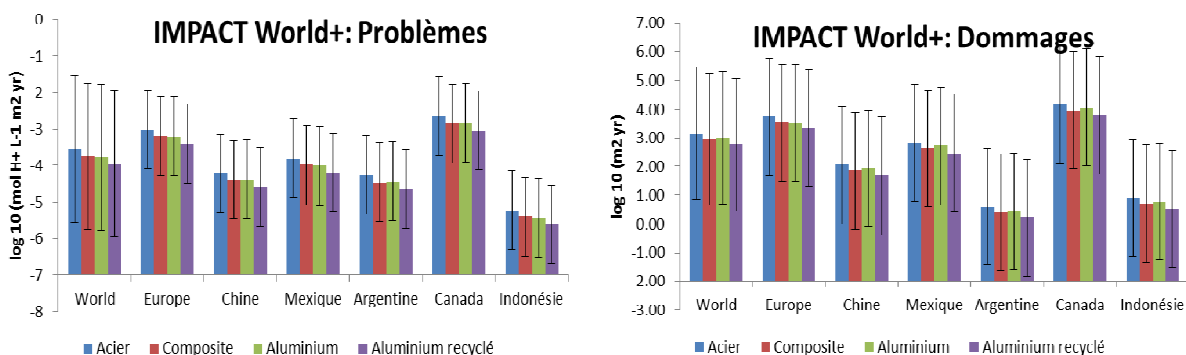


Figure 8-8: Intégration de l'incertitude dans l'évaluation des impacts de l'acidification aquatique pour le scénario de base.

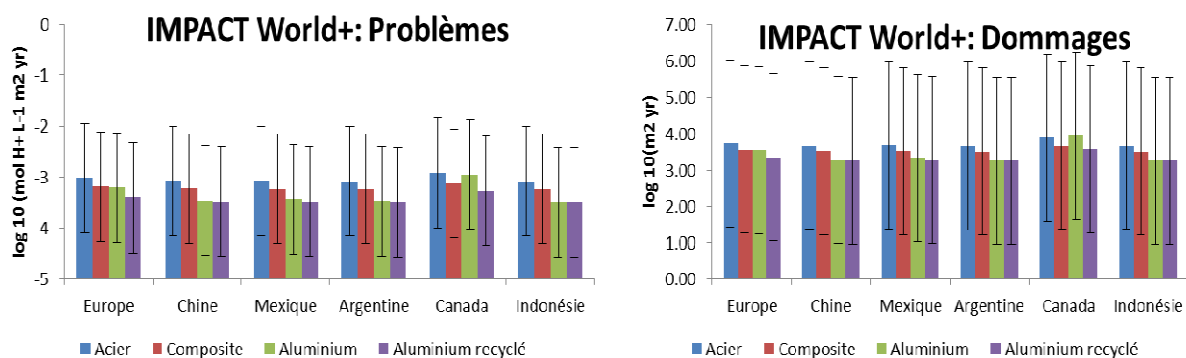


Figure 8-9: Intégration de l'incertitude dans l'évaluation des impacts de l'acidification aquatique pour le scénario de réaliste.

8.4 Conclusions de l'application des facteurs de caractérisation dans une analyse du cycle de vie

Pour la première fois, il a été possible d'intégrer les résultats des impacts potentiels de l'acidification aquatique, découlant d'une modélisation spatialisée, dans une étude ACV. Ainsi, pour la première fois, il est possible d'additionner, au niveau dommage, les impacts potentiels de plusieurs catégories d'impacts et de calculer la contribution des impacts de l'acidification aquatique face aux autres catégories d'impacts (sur une base cohérente). Dans un tel cas, les impacts de l'acidification aquatique domineraient alors largement les impacts attribuables à l'acidification terrestre. Ainsi, contrairement aux indications des pratiques courantes en ACVI, il est impératif d'évaluer les impacts potentiels de l'acidification aquatique.

De plus, il a été possible de comparer, de façon cohérente, des impacts provenant de différents continents. En ce sens, les résultats du scénario de base ont permis d'évaluer que, pour un même cycle de vie, les impacts potentiels pouvaient varier d'un facteur approximatif de 7 au niveau problème et d'un facteur 40 au niveau dommage entre deux pays distincts.

Il a également été possible, de délocaliser le lieu d'émissions de divers processus ACV. En ce sens, les résultats du scénario réaliste ont permis d'évaluer qu'il était possible d'avoir une inversion de certaines conclusions environnementales entre deux produits lors de la délocalisation du processus de production.

Cependant, l'intégration de l'incertitude empêche d'arriver à une conclusion nette, tant pour le scénario de base que pour le scénario réaliste, lorsqu'il est question de trancher entre les impacts potentiels des différents blocs avant.

De plus, la géolocalisation des impacts potentiels des émissions océaniques n'a pas eu de conséquences significatives sur les résultats de l'ACV.

Finalement, il a été observé que le lien non-linéaire entre les FCs de type problème et les FCs de type dommage pouvait entraîner une inversion des conclusions de l'ACV. Cette situation peut nécessiter l'ajout d'une phase d'interprétation. Ainsi, les praticiens de l'ACV devront soit trancher (préférer l'évaluation problème plutôt que l'évaluation dommage) ou mitiger (tenir compte de l'inversion) leurs conclusions.

CONCLUSION

Ce travail de recherche portait sur la modélisation environnementale des impacts potentiels causés par l'émission de substances acidifiantes. Cette thèse a permis de développer des FCs régionalisés à l'échelle mondiale pour l'acidification terrestre et aquatique. L'hypothèse de recherche de cette thèse s'appuyait sur l'énoncé suivant : *il est possible de différencier davantage les impacts potentiels de l'acidification terrestre et aquatique d'une émission de substances acidifiantes à l'échelle mondiale par une sophistication de la modélisation combinant le devenir atmosphérique, la sensibilité des milieux récepteurs ou le devenir des milieux récepteurs et l'effet.*

Sachant qu'il est admis qu'il y a différenciation lorsque les FCs reliés à divers lieux d'émissions sont différents par un ou des ordres de grandeur, alors il est possible de conclure, à la lumière des résultats obtenus, que l'hypothèse de recherche est validée. En effet, les FCs développés, tant pour l'acidification terrestre qu'aquatique, sont basés sur une modélisation environnementale du devenir atmosphérique, de la sensibilité/devenir des milieux récepteur et de l'effet et diffèrent les uns des autres par 6 ordres de grandeur (acidification terrestre) ou par 7 à 9 ordres de grandeur (acidification aquatique) et ce, partout à travers le monde.

Un résumé des contributions réalisées ainsi que des perspectives de développement et des recommandations sont présentées dans les sections suivantes.

Contributions scientifiques

Ce travail a permis de développer :

- Une chaîne de cause-effet de l'acidification aquatique.
- Un modèle de caractérisation d'évaluation des impacts potentiels de l'acidification terrestre et aquatique à l'échelle mondiale.
- Une approche permettant de calculer des facteurs de devenir atmosphérique selon une résolution spatiale de 2°x2.5° à l'échelle mondiale.
- Une base de données des paramètres physico-chimique des sols à l'échelle mondiale.
- Des facteurs de la sensibilité terrestre régionalisés à l'échelle mondiale.

- Un modèle d'évaluation du devenir des milieux récepteurs pour l'acidification aquatique.
- Des facteurs de devenir des milieux récepteurs pour l'acidification aquatique à l'échelle mondiale.
- Des FCs régionalisés problèmes et dommages pour l'acidification terrestre à l'échelle mondiale.
- Des FCs régionalisés problèmes et dommages pour l'acidification aquatique à l'échelle mondiale.

Contributions pratiques

Ce qui permet aux praticiens de l'ACV d'évaluer :

- Les impacts potentiels de l'acidification terrestre à l'échelle mondiale.
- Les impacts potentiels de l'acidification aquatique à l'échelle mondiale.
- La contribution de la déposition transcontinentale à l'impact potentiel total de l'acidification terrestre et aquatique.
- La variation spatiale des FCs de types problème et dommage de l'acidification terrestre et aquatique.
- L'incertitude des FCs de types problème et dommage de l'acidification terrestre et aquatique.
- L'incertitude associée à la variabilité spatiale suite à une perte d'information du lieu d'émission.

Perspectives et recommandations

La présente thèse a permis d'approfondir les connaissances relatives à l'évaluation des impacts potentiels des substances acidifiantes dans un contexte ACV. Cependant certains manques ont été identifiés et requiert, pour y pallier, de nouvelles perspectives de recherche telles que:

- *La régionalisation ou différenciation spatiale de l'inventaire du cycle de vie.*

Tel que mentionné aux sections 5.2.6, 6.3.6 et 7.2.6, des bases de données de l'inventaire du cycle de vie géolocalisées se doivent d'être développées afin d'utiliser, à leur plein potentiel, les FCs développés dans cette thèse. L'absence de ces bases de données requiert l'utilisation de FCs à une échelle de résolution grossière (pays, continents, échelle mondiale) ce qui ajoute d'emblée une incertitude à l'évaluation des impacts. Pour le moment, toutefois, cette thèse a fourni une estimation quantitative (de un à deux ordres de grandeur) de l'incertitude associée à la variabilité spatiale suite à une perte d'information du lieu d'émission.

- *La modélisation des facteurs de devenir sur plusieurs années.*

Tel que mentionné à la section 4.3.5, les facteurs de devenir ont été obtenus pour l'année de référence 2005. Même si l'année 2005 est considérée comme étant représentative de la moyenne météorologique de 1961 à 1990, des facteurs générés à partir de données météorologiques provenant de plusieurs années (5 à 10 ans) auraient été préférables. À mesure que les données météorologiques GEOS-5 seront disponibles, il pourra être possible d'effectuer les simulations GEOS-Chem et, par la suite, appliquer la méthode explicitée au chapitre 4 afin de développer des facteurs de devenir moyens qui seront moins sujets à de possibles variations annuelles.

- *La diminution de l'incertitude.*

Tel qu'observé à la section 8.5.3, l'incertitude peut jouer un rôle prépondérant dans l'interprétation des impacts du cycle de vie. L'incertitude inhérente aux FCs se doit d'être diminuée afin de fournir une évaluation des impacts juste et précise. Afin de diminuer cette incertitude, il faudrait notamment i) augmenter la qualité des paramètres du modèle PROFILE dont les conséquences se répercutent à la fois sur l'évaluation des FCs de l'acidification terrestre et aquatique, ii) obtenir des données liant le PNOF des plantes vasculaires au pH pour les biomes

manquants et iii) améliorer les corrélations des modèles de régression liant le PDF des poissons au pH. Le point i) est particulièrement important puisqu'il a des conséquences à la fois sur le facteur de sensibilité/devenir des milieux récepteurs ainsi que sur le facteur d'effet de l'acidification terrestre et aquatique. La variabilité spatiale des paramètres de PROFILE se répercute à la hauteur d'un facteur 100 sur le facteur de sensibilité terrestre ainsi que d'un facteur 10 sur le facteur de devenir des milieux récepteurs. Cependant, c'est l'incapacité à évaluer une valeur de pH actuelle (« background ») juste qui a le plus de conséquences; le facteur d'effet, tant terrestre qu'aquatique, contribue le plus aux impacts (plus de 90%). En effet, il a été évalué que le pH variait dans un intervalle d'un facteur 2 sur une échelle de pH. Une faible variation, sur une échelle de pH, est pourtant significative pour le maintien de la vie.

- *L'incorporation des réactions de neutralisation ou de création des ions H^+ dans les lacs.*

Dans le but d'améliorer la justesse de l'évaluation du pH des lacs, il serait nécessaire d'évaluer les réactions de neutralisation et/ou de création des ions H^+ . Pour ce faire, deux approches pourraient être empruntées : i) évaluer la concentration des ions H^+ dans les lacs à l'aide d'un modèle complexe, tel que proposé par Hofmann et al. (Hofmann, Meysman, Soetaert, & Middelburg, 2008), nécessitant des valeurs de concentrations pour de nombreuses substances; valeurs, au meilleur des connaissances, indisponibles ou ii) tenter d'évaluer un taux de réaction (r) spatialisé qui pourra être multiplié par le volume des lacs (i.e. $r \times V$).

- *Développement de régressions reliant le pH et les effets sur les poissons basées sur les biomes plutôt que les continents*

Bien que les modèles de régression, reliant le pH à la perte de biodiversité des poissons à une échelle continentale, soient acceptables, il serait plus pertinent d'évaluer ces régressions selon une résolution regroupant des environnements possédant un climat, une faune et une végétation similaire telle que les biomes. Ceci améliorerait probablement les corrélations liant le pH au PDF des poissons.

- *La modélisation dynamique.*

Il a été montré que des processus géochimiques du sol peuvent retarder les conséquences de l'acidification (Posch et al., 2003). C'est pourquoi Van Zelm et al. (2007) ont évalués des FCs dynamiques. Il pourrait également être possible de poursuivre la modélisation débutée avec

PROFILE afin d'effectuer une modélisation dynamique avec le modèle dynamique associé; SAFE. Ceci nécessiterait cependant des données de sols supplémentaires ainsi que l'évaluation des variations temporelles des paramètres de sols existants. Par contre, une fois cette embûche résolue, il serait, non seulement, possible d'évaluer la contribution des processus géochimiques retardant le processus d'acidification mais également de tenir compte des variations saisonnières du pH des sols ainsi que du pH voyageant vers les eaux de surface.

- *L'acidification océanique.*

Les océans ont été considérés, jusqu'à présent, comme des milieux non-sensibles (Krewitt et al., 2001). Cependant des études ont commencé à montrer les impacts, notamment sur les bancs de coraux, de l'acidification des océans. Ainsi, il pourrait être possible d'introduire une nouvelle catégorie d'impact en ACVI soit l'acidification océanique. Contrairement à l'acidification terrestre et aquatique, il est présumé que la dissolution du CO₂ dans les océans est le principal responsable de la baisse du pH enregistrée dans les océans. En modélisant cet échange, tout en ajoutant l'apport d'ions H⁺ provenant de la déposition directe ainsi et du transport de l'eau des continents vers les océans, il pourrait être possible d'avoir une modélisation du devenir atmosphérique et du devenir des milieux récepteurs continentaux qui devra être complétée par l'évaluation des effets.

BIBLIOGRAPHIE

- Alveteg, M. (1998). *Dynamics of forest soil chemistry*. phd, Lund University, Lund.
- Alveteg, M., & al. (1995). Regional assessment of the temporal trends in soil acidification in southern Sweden, using the SAFE model. *Water, Air, and Soil pollution*(85), 2509-2514.
- Alveteg, M., Walse, C., & Sverdrup, H. (1997). Evaluating simplifications used in regional applications of the SAFE and MAKEDEP models. *Ecological modelling*, 107, 265-277.
- Amann, M. (2004). The Regional Air Pollution Information and Simulation (RAINS) model Review 2004. 12.
- Amarasinghe, U. S., & Welcomme, R. S. (2002). An analysis of fish species richness in natural lakes. *Environmental Biology of Fishes*, 65, 327–339.
- Araoye, P. A. (2009). The seasonal variation of pH and dissolved oxygen (DO₂) concentration in Asa lake Ilorin, Nigeria. *International Journal of Physical Sciences*, 4(5), 271-274.
- Azevedo, L. A., Van Zelm, R., Hendriks, A. J., Bobbink, R., & Huijbregts, M. A. J. (2012). Global assessment of the effects of terrestrial acidification on plant species richness. *Submitted*
- Azevedo, L. A., Van Zelm, R., Hendriks, A. J., Bobbink, R., & Huijbregts, M. A. J. (2012). Global assessment of the effects of terrestrial acidification on plant species richness. *Environmental Pollution*.
- Azevedo, L. B., van Zelm, R., Hendriks, A. J., Bobbink, R., Roy, P.-O., & Huijbregts, M. (2011). *Biome-specific effect factors for terrestrial acidification at the global scale*. Paper presented at the 21th SETAC Europe, Milan, Italy, 15–19 May 2011
- Bare, J. C., Norris, G. A., Pennington, D. W., & McKone, T. (2002). TRACI: The Tool for the Reduction and Assessment of Other Environmental Impacts. *Journal of Industrial Ecology*, 6(3&4), 49-78.
- Barret, K., & Berge, E. (1996). Transboundary air pollution in Europe: Estimated dispersion of acidifying agents and of near surface ozone. In EMEP (Ed.): The Norwegian Meteorological Institute,.
- Batjes, N. H. (2006). ISRIC-Wise derived soil properties on a 5 by 5 arc-minutes global grid (version 1.1) *Report 2006/02* (pp. 55): Report 2006/02, ISRIC-World Soil Information, Wageningen (with data set).
- Beccali, G., Beccali, M., & Cellura, M. (1997). *Fuzzy set application in life cycle inventory of building materials*. Paper presented at the Building and the Environment: Proceedings of the Second International Conference., Centre Scientifique et Technique du Bâtiment, Paris, France.
- Benedictow, A., Fagerli, H., Gauss, M., Jonson, J. E., Nyìri, A., Simpson, D., . . . Holy, M. (2009). Transboundary Acidification, Eutrophication and Ground Level Ozone in Europe in 2007. In EMEP (Ed.), *EMEP Status report*: Norwegian Meteorological Institute,.

- Bey, I., Jacob, D., Yantosca, R., Logan, J., Field, B., Fiore, A., . . . Schultz, M. (2001). Global modeling of tropospheric chemistry with assimilated meteorology: Model description and evaluation. *Journal of Geophysical research*, 106(D19), 23073-23905.
- BGCI. (2012). Vascular plants Retrieved October 15 2012, from <http://www.bgci.org/>
- Bobbink, R. (2004). Plant species richness and the exceedance of empirical nitrogen critical loads: an inventory *Report Landscape Ecology*. Utrecht University/RIVM: Bilthoven, The Netherlands.
- Bouwman, & al. (2002). A Global analysis of acidification and eutrophication of terrestrial ecosystems. *Water, Air, & Soil Pollution*, 141, 349-382.
- Chevalier, J. L., & Le Téno, J. F. (1996). Life cycle analysis with ill-defined data and its application to building products. *Internation Journal of Life Cycle Assessment*, 1(2), 90-96.
- Connolly, S., Cain, T., Vestal, J., & Edwards, P. (2009). The Potential Effects of Acid Deposition: What's a National Forest to Do? Retrieved February 18, 2009, from www.stream.fs.fed.us/afsc/pdfs/Connolly.pdf
- Cosby, B. J., Ferrier, R. C., Jenkins, A., & Wright, R. F. (2001). Modelling the effects of acid deposition: refinements, adjustments and inclusion of nitrogen dynamics in the MAGIC model. *Hydrology and Earth System Sciences*, 5(3), 499-517.
- Dentener. (2006a). Electronic Supplement: Nitrogen and sulfur deposition on regional and global scales: a multi-model evaluation (pp. 52): Rapport remis à GBC le 30 mars 2006.
- Dentener. (2006b). Nitrogen and sulfur deposition on regional and global scales: a multi-model evaluation (pp. 52): Rapport remis à GBC le 30 mars 2006.
- Dentener. (2007). IPCC Results: comparison with measurements Retrieved 16 mai 2007, from http://ccupeople.jrc.it/dentener/resultsIPCC_meas.htm
- DeVries, & Breeuwisma. (1987). The relation between soil acidification and element cycling. *Water, Air, and Soil pollution*(35), 293-310.
- Downing, R. J., Hettelingh, J.-P., & de Smet, P. A. M. (1993). Calculation and mapping of critical loads in Europe: Status report. In N. I. o. P. H. a. E. P. R. Coordination Centre for Effects (Ed.). Bilthoven, Netherlands.
- Driscoll, C. T., & Van Dreason, R. (1993). Seasonal and long-term temporal patterns in the chemistry of Adirondack lakes. *Water, air, and soil pollution*, 67, 319-344.
- Environment Canada. (2004). 2004 Canadian Acid Deposition: Science Assessment, summary of key results. In Environment Canada (Ed.), (pp. 36): Meteorological Service of Canada.
- European Commission-Joint Research Centre. (2011). ILCD Handbook: Recommendations for Life Cycle Impact Assessment in the European context-based on existing environmental impact assessment models and factors E. C.-J. R. Centre (Ed.)
- European Environment Agency. (2005). Source apportionment of nitrogen and phosphorus inputs into the aquatic environment. In European Environment Agency (Ed.), (pp. 52): European Environment Agency.

- Evans, M., & Jingqiu, M. (2009). Updated chemical reactions now used in GEOS-Chem v8-02-01 through GEOs Chem v8-02-03 Retrieved June 22, 2011, 2011
- Finnveden, G., Hauschild, M., Ekvall, T., Guinée, J., Heijungs, R., Hellweg, S., . . . Suh, S. (2009). Recent development in Life Cycle Assessment. *Journal of Environmental Management*, 91, 1-21.
- Fréchette-Marleau, M., Bécaert, M., Margni, M., Samson, R., & Deschênes, L. (2008). Evaluating the variability of aquatic acidification and photochemical ozone formation characterization factors for Canadian emissions. *International Journal of Life Cycle Assessment*, 13(7), 593-604.
- Goedkoop, M., Heijungs, R., Huijbregts, M., De Schryver, A., Struijs, J., & van Zelm, R. (2009). ReCiPe 2008: A life cycle impact assessment method which comprises harmonised category indicators at the midpoint and the endpoint level. In S. P. a. E. V. Netherlands Ministry of Housing (Ed.), (First edition ed.).
- Goedkoop, M., & Spriensma, R. (2001). The Eco-indicator 99 - A Damage Oriented Method for Life Cycle Impact Assessment - Methodology Report (3rd ed., pp. 144): PRé Consultants B.V. .
- Grönholm, T., & Annala, A. (2007). Natural distribution. *Mathematical Biosciences*, 210(2), 659-667.
- Guinée, J. B., Gorée, M., Heijungs, R., Huppes, G., Kleijn, R., Koning, A., . . . Huijbregts, M. (2001). An operational guide to the ISO standards: Part A, Part B, Part 2B and Part 3.
- Hall, J., Reynolds, B., Aherne, J., & Hornung, M. (2001). The importance of selecting appropriate criteria for calculating acidity critical loads for terrestrial ecosystems using the simple mass balance equation. *Water, Air, & Soil Pollution: Focus*, 1, 29-41.
- Harvard. (2008). The GEOS Chem model Retrieved 20 septembre 2007, from <http://www.as.harvard.edu/chemistry/trop/geos/>
- Hauschild, M., & Potting, J. (2003). Spatial differentiation in life cycle impact assessment The EDIP2003 methodology (pp. 149): Institute for Product Development Technical University of Denmark.
- Hayashi, K., Okazaki, M., Itsubo, N., & Inaba, A. (2004). Development of Damage Function of Acidification for Terrestrial Ecosystems Based on the Aluminum Toxicity on Net Primary Production. *International Journal of Life Cycle Assessment*, 9, 13-22.
- Heijungs, R., & Frischknecht, R. (2005). Representing Statistical Distributions for Uncertain Parameters in LCA. *Internation Journal of Life Cycle Assessment*, 10(4), 249-254.
- Heijungs, R., Guinée, J. B., Huppes, G., Lankreijer, R. M., Haes, H. A. U. d., Wegener, A., . . . Goede, H. P. d. (1992). *Environmental life cycle assessment of products. Guidelines and backgrounds.*: The Netherlands: Centre of Environmental Sciences.
- Hindle, P., & de Oude, N. T. (1996). SPOLD-society for the promotion of life cycle development *International Journal of Life Cycle Assessment*, 1(1), 55-56.
- Hoffman, L., Weidema, B. P., Kristiansen, K., & Ersbøll, A. K. (1995). Statistical analysis and uncertainties in relation to LCA. In N. C. o. Ministers (Ed.). Copenhagen, Denmark.

- Hofmann, A. F., Meysman, F. J. R., Soetaert, K., & Middelburg, J. J. (2008). A step-by-step procedure for pH model construction in aquatic systems. *Biogeosciences*, 5, 227-251.
- Huijbregts, M., Hellweg, S., & Hertwich, E. (2011). Do We Need a Paradigm Shift in Life Cycle Impact Assessment? *Environmental science & technology*, 45(9), 3833-3834.
- Huijbregts, M., Schöpp, W., Verkuijen, E., Heijungs, R., & Reijnders, L. (2000). Spatially Explicit Characterization of Acidifying and Eutrophying Air Pollution in Life-Cycle Assessment. *Journal of Industrial Ecology*, 4(3), 75-92.
- Huijbregts, M. A. J. (2001). *Uncertainty and variability in environmental life-cycle assessment*. Phd-thesis, University of Amsterdam, Netherlands.
- Humbert, S., Margni, M., & Jolliet, O. (2004). IMPACT 2002+: User Guide Draft for Version 2.0. 1-37.
- Environmental management-Life cycle assessment-Principles and framework, ISO 14040 C.F.R. (2006).
- Jackson, Canadell, Ehleringer, Mooney, Sala, & Schulze. (1996). A global analysis of root distributions for terrestrial biomes. *Oecologia*, 108(3), 389-411.
- Jacob, D., Liu, H., Mari, C., & Yantosca, R. (2000). Harvard wet deposition scheme for GMI. *Harvard University Atmospheric Chemistry Modeling Group*.
- Jeffries, D. S., & Ouimet, R. (2004). 2004 Canadian Acid Deposition Science Assessment and Summary of Key Results In E. Canada (Ed.), (pp. 440). Downsview: Service Météorologique Canada.
- Jolliet, O., Saadé, M., & Crettaz, P. (2005). *Analyse du cycle de vie: comprendre et réaliser un écobilan*. Suisse: Presses Polytechniques et universitaires Romandes.
- Jönsson, C., Warfvinge, P., & Sverdrup, H. (1995). Uncertainty in predicting weathering rate and environmental stress factors with the PROFILE model. *Water, Air, & Soil Pollution*, 81, 1-13.
- Kajino, M., Ueda, H., Sato, K., & Sakurai, T. (2010). Spatial distribution of the source-receptor relationship of sulfur in Northeast Asia. *Atmospheric chemistry and Physics Discussions*, 10, 30089-30127.
- Kaluza, P., Kölzsch, A., Gastner, M. T., & Blasius, B. (2010). The complex network of global cargo ship movements. *J. Royal Society: Interface*, 7(48), 1093-1103.
- Kottek, M., Grieser, J., Beck, C., Rudolf, B., & Rubel, F. (2006). World Map of the Köppen-Geiger climate classification updated. *Meteorologische Zeitschrift*, 15(3), 259-263.
- Krewitt, W., Trukenmüller, A., Bachmann, T. M., & Heck, T. (2001). Country-specific damage factors for air pollutants. *Internation Journal of Life Cycle Assessment*, 6(4), 199-210.
- Krol, Houweling, Bregman, Broek, v. d., Segers, Velthoven, v., . . . Bergamaschi. (2005). TM5: a global two-way nested chemistry transport zoom model: algorithm and applications. *Atmospheric Phys. Chem.*, 5, 417-432.
- Kros, J., Reinds, G. J., De Vries, W., Latour, J. B., & Bollen, M. (1995). Modelling the response of terrestrial ecosystems to acidification and desiccation scenarios. *Water, Air, & Soil Pollution*, 85, 1101-1106.

- Kurz, D., Eggenberger, U., & Rihm, B. (1995). Evaluating critical loads of acidity for Swiss forest soils: Comparison of two calculation methods. *Water, Air, & Soil Pollution*, 85(4), 2533–2538.
- Kuylenstierna, J., Rodhe, H., Cinderby, S., & Hicks, K. (2001). Acidification in developing countries: ecosystem sensitivity and the critical load approach on a global scale. *Ambio*, 30(1), 20-28.
- Latour, J., & Reiling, R. (1993). A multiple stress model for vegetation ('move') : a tool for scenario studies and standard-setting. *Science of total environment Supplement*, 1513-1526.
- Lehner, B., & Döll, P. (2004). Development and validation of a global database of lakes, reservoirs and wetlands. *Journal of Hydrology*, 296(1-4), 1-22.
- Liu, J., Mauzerall, D. L., & Horowitz, L. W. (2008). Source-receptor relationships between East Asian sulfur dioxide emissions and Northern Hemisphere sulfate concentrations. *Atmospheric chemistry and Physics*, 8, 3721-3733.
- Lui, X., Joyce, E. P., Das, B., Bergmann, D. J., Rodriguez, J. M., Strahan, S., . . . Feng, Y. (2007). Uncertainties in global aerosol simulations: Assessment using three meteorological data sets. *Journal of Geophysical research*, 112(41).
- Margni, M., & Lessage, P. (2009). Incertitudes *Notes de cours: GCH6310A*: École Polytechnique de Montréal.
- Merriam Webster: an encyclopaedia britannica company. (2012). vascular plants Retrieved November 8, 2012, from <http://www.merriam-webster.com/dictionary/vascular%20plant>
- Mutel, C., & Hellweg, S. (2009). Regionalized Life Cycle Assessment: Computational Methodology and Application to Inventory Databases. *Environmental science & technology*, 43(15), 5797–5803.
- Nakano, K., Nakniwa, C., Kabeya, T., Iguchi, T., & Aoki, R. (2007). Current Activities of the Life Cycle Assessment Society of Japan. *International Journal of Life Cycle Assessment*, 12(7), 546.
- NOAA National Climatic Data Center. (2005). State of the Climate: Global Analysis for Annual 2005 Retrieved June 5th 2011, from www.ncdc.noaa.gov/sotc/global/2005/13
- Norris, G. A. (2003). Impact Characterization in the Tool for the Reduction and Assessment of Chemical and other Environmental Impacts: Methods for Acidification, Eutrophication, and Ozone Formation. *Journal of Industrial Ecology*, 6(3&4), 79-101.
- Olson, D. M., Dinerstein, E., Wikramanayake, E. D., Burgess, N. D., Powell, G. V. N., Underwood, E. C., . . . Kassem, K. R. (2001). Terrestrial Ecoregions of the World: A New Map of Life on Earth. *BioScience*, 51(11), 933-938.
- Payet, J. (2006). Novel Methods for Integrated Risk Assessment of Cumulative Stressors in Europe: D.4.1.4 Report describing a method for the quantification of impacts on aquatic freshwater ecosystems resulting from different stressors (e.g., toxic substances, eutrophication, etc). In EPFL (Ed.), (pp. 42).

- Peppler-Lisbach, C., & Kleyer, M. (2009,). Patterns of species richness and turnover along the pH gradient in deciduous forests: testing the continuum hypothesis. *Journal of Vegetation Science*, 20(6), 984-995.
- Petersen, E. H. (1997). *Life-cycle assessment of building components. Handling uncertainties in LCAs*. Paper presented at the Building and the Environment: Proceedings of the Second International Conference., Centre Scientifique et Technique du Bâtiment, Paris, France.
- Pidwirny, M. (2006). Acid Precipitation *Fundamentals of Physical Geography, 2nd Edition*. Retrieved from <http://www.physicalgeography.net/fundamentals/8h.html>
- Portejoie, Martinez, & Landmann. (2002). L'ammoniac d'origine agricole: impacts sur la santé humaine et animale et sur le milieu naturel. *INRA Productions Animales*.
- Posch, Hetteling, & Slootweg. (2003). Manual for dynamic modelling of soil response to atmospheric deposition. In WGE (Ed.), (pp. 71): ICP M&M Coordination Center for Effects.
- Posch, M. (2004). Manual on methodologies and criteria for modelling and mapping critical loads & levels and air pollution effects, risks and trends Chapter 5: Mapping critical loads. In LRTAP (Ed.), *UNECE convention on long-range Transboundary air pollution*, : UNECE.
- Posch, M., de Smet, P. A. M., Hetteling, J.-P., & Downing, R. J. (1999). Calculation and Mapping of Critical Thresholds in Europe: Status Report 1999. In C. C. f. E. N. I. o. P. H. a. t. Environment (Ed.), (pp. 169). Bilthoven, Netherlands: RIVM.
- Posch, M., Seppälä, J., Hetteling, J.-P., Johansson, M., Margni, M., & Jolliet, O. (2008). The role of atmospheric dispersion models and ecosystem sensitivity in the determination of characterisation factors for acidifying and eutrophying emissions in LCIA. *International Journal of Life Cycle Assessment*, 13(6), 477-486.
- Potting, J., & Hauschild, M. Z. (2006). Spatial differentiation in Life Cycle Impact Assessment: a decade of method development to increase the environmental realism in LCIA. *International Journal of Life Cycle Assessment*, 11(1), 11-13.
- Potting, J., Schöpp, W., Blok, K., & Hauschild, M. (1998). Site-Dependent Life-Cycle Impact Assessment. *Journal of Industrial Ecology*, 2(2), 63-87.
- Rana, S. V. S. (2006). Environmental pollution: health and toxicology Retrieved from <http://books.google.ca/books?id=GQftLn7u8igC&hl=fr>
- Rapp, L., & Bishop, K. (2003). Modeling Surface Water Critical Loads with PROFILE: Possibilities and Challenges. *Journal of environmental quality*, 32, 2290-2300.
- Rodhe, H., Dentener, F. J., & Schultz, M. (2002). The global distribution of acidifying wet deposition. *Environmental science & technology*, 36(20), 4382-4388.
- Roy, P.-O., Deschênes, L., & Margni, M. (2012). Life Cycle Impact Assessment of Terrestrial Acidification: Modeling Spatially Explicit Soil Sensitivity at the Global Scale. *Environmental science & technology*, 46(15), 8270-8278.
- Roy, P.-O., Huijbregts, M., Deschênes, L., & Margni, M. (2011). *Regionalized global atmospheric source-to-receptor modeling for LCIA's acidification*. Paper presented at the Presented at 21th SETAC Europe,, Milan, Italy,15-19 May 2011.

- Roy, P.-O., Huijbregts, M. A. J., Deschênes, L., & Margni, M. (2012). Spatially-differentiated atmospheric source-receptor relationships for nitrogen oxides, sulfur oxides and ammonia emissions at the global scale for life cycle impact assessment. *Atmospheric Environment*.
- Sanderson, M. G., Dentener, F. J., Fiore, A. M., Cuvelier, C., Keating, T. J., Zuber, A., . . . Wind, P. (2008). A multimodel study of the hemispheric transport and deposition of oxidised nitrogen. *Geophysical research letters*, 35.
- Santruckova, H., Santrucek, J., Setlik, J., Svoboda, M., & Kopacek, J. (2007). Carbon Isotopes in tree rings of Norway Spruce exposed to atmospheric pollution. *Environmental science & technology*, 41, 5778-5782.
- . Sea Distances-Voyage Calculator. (2012) Retrieved October 1, 2012, from <http://sea-distances.com/>
- Seibert, P., & Frank, A. (2003). Source-receptor matrix calculation with a Lagrangian particle dispersion model in backward mode. *Atmospheric chemistry and Physics Discussions*, 3, 4515-4548.
- Seppälä, J., Posch, M., Johansson, M., & Hetteling, J.-P. (2006). Country-dependant Characterisation factors for acidification and terrestrial eutrophication based on accumulated exceedance as an impact category indicator. *International Journal of Life Cycle Assessment*, 11(6), 403-416.
- Shannon, J. D. (1997). Scales of sulfur concentrations and deposition from the perspective of the receptor. *Atmospheric Environment*, 31(23), 3933-3939.
- Skjelkvale, B. L., Stoddard, J. L., Jeffries, D. S., Tørseth, K., Høgasen, T., Bowman, J., . . . Worsztynowicz, A. (2005). Regional scale evidence for improvements in surface water chemistry 1990-2001. *Environmental pollution*, 137, 165-176.
- Steen, B. (1999). A systematic approach to environmental priority strategies in product development (EPS) version 2000: Models and data of the default method (pp. 312): CPM report.
- Sverdrup, H., & De Vries, W. (1994). Calculating critical loads for acidity with the simple mass balance method. *Water, Air, & Soil Pollution*, 72(1), 143-162. doi: 10.1007/BF01257121
- Tang, Y. (2002). A case study of nesting simulation for the Southern Oxidants Study 1999 at Nashville. *Atmospheric Environment*, 36(10), 1691-1705.
- Tarrason, L., Fagerli, H., Jonson, J. E., Simpson, D., Benedictow, A., Klein, H., & Vestreng, V. (2007). Transboundary Acidification, Eutrophication and Ground Level Ozone in Europe in 2005. In EMEP (Ed.), *EMEP Status report: Norwegian Meteorological Institute*.
- Toffoletto, L., Bulle, C., Godin, J., Reid, C., & Deschênes, L. (2007). LUCAS - A New LCIA Method Used for a Canadian-Specific Context. *International Journal of Life Cycle Assessment*, 12(2), 93-102.
- Tournier, M., & Servant, M. (1983). *Chimie 2: Les équilibres chimiques, la cinétique chimique* (Vol. 2). Montréal: CEC.
- Tsyro, S. G. (2001). Description of the Lagrangian Acid Deposition Model, 2011, from <http://www.emep.int/acid/ladm.html>

- Tuovinen J.-P., & Krüger O. (1994). Re-evaluation of the local deposition correction in the Lagrangian EMEP model. In EMEP/MSC-W Note 4/94 (Ed.): Norwegian Meteorological Institute,.
- Udo de Haes, H., Finnveden, G., Goedkoop, M., Hauschild, M., Hertwich, E., Hofstetter, P., . . . Steen, B. (2002). *Life-Cycle Impact Assessment: Striving towards best practice*: SETAC.
- Ulrich. (1985). Interaction of indirect and direct effects of air pollutants in forests. *Air Pollution and plants*.
- UNECE. (1999). Protocole à la convention de 1979 sur la pollution atmosphérique transfrontière à longue distance, relatif à la réduction de l'acidification, de l'eutrophisation et de l'ozone. In UNECE (Ed.), (pp. 86). Gothenburg.
- Utrecht_Universiteit. (2008). The TM5 model - Overview Retrieved 6 aout 2008, from <http://www.phys.uu.nl/~tm5/>
- Van Jaarsveld J. A., Van Pul W. A. J, & M., D. L. F. A. A. (1997). Modelling transport and deposition of persistent organic pollutants in the European region *Atmospheric environment*, 31(7), 1011-1024. doi: 10.1016/S1352-2310(96)00251-8.
- van Zelm, R. (2010). *Damage modeling in life cycle impact assessment*. Phd thesis, Radboud university, Netherlands.
- Van Zelm, R. (2012, January 12, 2012). [the relationship between PDF and PNOF].
- van Zelm, R., Huijbregts, M., van Jaarsveld, H. A., Jan Reinds, G., de Zwart, D., Struijs, J., & van de Meent, D. (2007). Time horizon dependant characterization factors for acidification in Life-Cycle Assessment based on forest plant species occurrence in Europ. *Environmental science & technology*, 41(3), 922-927.
- Wang, B.-J., & Chen, C.-T. A. (1990). Geochemistry of the anoxic Great Ghost lake. *Proceedings of the national science council, Republic of China*, 14(1), 14-20.
- Warfvinge, P., & Sverdrup, H. (1992). Calculating critical loads of acid deposition with PROFILE: a steady-state soil chemistry model. *Water, Air, and Soil pollution*(63), 119-143.
- Weidema B. P., Bauer C., Hischier R., Mutel C., Nemecek T., Reinhard J., . . . Wernet G. (2012). Overview and methodology: Data quality guideline for the ecoinvent database version 3.
- Weidema, B. P., Bauer, C., Hischier, R., Mutel, C., Nemecek, T., Reinhard, J., . . . Wernet, G. (2012). Overview and methodology. Data quality guideline for the ecoinvent database version 3, Ecoinvent Report 1(v3). St. Gallen: The ecoinvent Centre.
- Wenzel, H., Hauschild M.Z., & Alting, L. (1997). *Environmental assessment of products. Vol. 1 - Methodology, tools, techniques and case studies*: Chapman & Hall, United Kingdom, 1997, Kluwer Academic Publishers, Hingham, MA. USA. .
- Whelpdale, D. (1991). *Methods for assessing exposure of human and non-human biota: Geographically-based atmospheric modeles*: Wiley & sons.
- Whittaker, R. H., . (1972). Evolution and Measurement of Species Diversity. *Taxon*, 21((2/3)), 213-251.

- Wild Species. (2010, August 12, 2011). Vascular plants Retrieved October 15, 2012, from <http://www.wildspecies.ca/wildspecies2010/results-vascular.cfm?lang=e>
- Zhao, Y., Duan, L., Larssen, T., Hu, L., & Hao, J. (2007). Simultaneous assessment of depositions of base cations, sulfur and nitrogen using an extended critical load function for acidification. *Environmental science & technology*, 41(6), 1815–1820.

ANNEXE 1 – Modèles atmosphérique considérés

Tableau A1.1 : Modèle atmosphérique considéré pour le développement des facteurs de devenir atmosphérique à l'échelle mondiale

Nom du modèle	Application mondiale	Composé chimique	Acceptabilité selon critères 1 et 2	Référence
ASTRAP	Etats-Unis et provinces canadiennes	NO _x , SO _x		(Shannon, 1997)
CHASER CTM *	x	NO _x , SO _x		(Sudo et al, 2002)
CHASER GCM *	x	NO _x , SO _x		(Sudo et al, 2002)
EMEP	Europe	NO _x , SO _x , NH _x		(Olendrzynski <i>et al.</i> , 2000)
EUTREND	Europe	NO _x , SO _x , NH _x		(van Zelm et al, 2007)
FRSGC UCI *	x	NO _x		(Wild et al, 2000)
GEOS-CHEM *	x	NO _x , SO _x , NH _x	x	(Bey et al., 2001)
GISS *	x	NO _x , SO _x		(Shindell et al, 2003)
GMI GMAO *	x	NO _x		(Dentener, 2006a; Lui et al, 2007)
GMI DAO *	x	NO _x		(Dentener, 2006a; Lui et al, 2007)
GMI GISS *	x	NO _x		(Dentener, 2006a; Lui et al, 2007)
IMAGES (IASB) *	x	NO _x , SO _x		(Muller et Brasseur, 1995)
LLNL IMPACT *	x	NO _x		(Rotman et al, 2004)
LMDz INCA CTM *	x	NO _x		(Hauglustaine et al, 2004)
MOGUNTIA	x	SO _x		(Kuylenstierna et al., 2001)
MATCH MPIC ECMWF *	x	NO _x		(Kuhlmann et al, 2003)
MATCH MPIC NCEP *	x	NO _x		(Kuhlmann et al, 2003)
MOZ2 GFDL *	x	NO _x , SO _x , NH _x	x	(Horowitz, 2003) (Dentener, 2006b)
MOZART 4 *	x	NO _x , SO _x , NH _x	x	(Horowitz, 2003)
MOZECH *	x	NO _x		(Dentener, 2006a) citing (Rast et al, 2006) in prep
MOZECH2 *	x	NO _x		(Dentener, 2006a) citing (Rast et al, 2006) in prep
RAINS	Europe	NO _x , SO _x , NH _x		(Amann, 2004)
RAINS Asia	Asie du Sud Est	SO _x		(Downing. <i>et al.</i> , 1997)
STOCHEM-Hadm3 *	x	NO _x , SO _x , NH _x	x	(Collins et al, 2000)
STOCHEM-HadGEM *	x	NO _x , SO _x , NH _x	x	(Collins et al, 2000)
TM4 *	x	NO _x , SO _x , NH _x	x	(Dentener et al, 2003)
TM5 *	x	NO _x , SO _x , NH _x	x	(Krol <i>et al.</i> , 2005)
UIO CTM2 *	x	NO _x		(Sundet, 1997; Dentener, 2006a; Lui et al, 2007)
ULAQ *	x	NO _x , SO _x		(Pitari et al, 2002)

* modèles ayant une évaluation numérique effectuée par Dentener (2007).

ANNEXE 2 – Supplementary data associé au manuscrit 1 (Chapitre 4)

GEOS-Chem emissions

This section presents the emission selection for the GEOS-Chem simulation (from the input.geos file). The file works with switches that are turned on or off: “T” stands for True, “F” for False and “-1” can be defined, in this specific case, as no scaling.

%%% EMISSIONS MENU %%% :

Turn on emissions? : T

Emiss timestep (min) : 30

Include anthro emiss? : T

=> Scale to (1985-2005): -1

=> Use EMEP emissions? : T

=> Use BRAVO emissions?: T

=> Use EDGAR emissions?: T

=> Use STREETS emiss? : T

=> Use CAC emissions? : T

Use EPA/NEI99 (anth+bf)? : T

w/ ICARTT modif.? : T

w/ VISTAS NO_x emis? : F

Include biofuel emiss? : T

Include biogenic emiss? : T

=> Use MEGAN inventory?: T

=> Use MEGAN for MONO? : T

Include biomass emiss? : T

=> Seasonal biomass? : T

=> Scaled to TOMSAI? : F

=> Use GFED2 biomass? :---

=> monthly GFED2? : T

=> 8-day GFED2? : F

=> 3-hr GFED2? : F

=> synoptic GFED2? : F

Individual NO_x sources :---

=> Use aircraft NO_x? : T

=> Use lightning NO_x : T

=> Scale glb flrate?: T

=> OTD reg redist? : F

=> OTD loc redist? : T

=> Use CTH param? : T

=> Use MFLUX param? : F

=> Use PRECON param?: F

=> Use soil NO_x : T

Use SHIP emissions :---

=> global EDGAR ? : T

=> EMEP over EUROPE ? : T

=> ship SO₂ Colbert ? : F

=> ship SO₂ Arctas ? : T

Use COOKE BC/OC (N. Am.): F

Use AVHRR-derived LAI? : T

Tableaux A2.1 to A2.7 present the different inventory databases used in the GEOS-Chem simulation.

Tableau A2.1: GEOS-Chem anthropogenic emissions

	Inventory	Year	Region	Notes
Global	GEIA	1985	Global	Default
	EDGARD	2000	Global	Optional: activated
Regional	CAC	2002, 2005	Canada	Optional: activated
	EMEP	2000	Europe	Optional: activated
	EPA	1999	United States	Optional: activated
	BRAVO	1999	Mexico	Optional: activated
	STREETS	2000, 2006	South East Asia	Optional: activated

Tableau A2.2: GEOS-Chem biofuel emissions

	Inventory	Year	Region	Notes
Global	Yevich & Logan	2003	Global	Default
Regional	EPA	1999	United States	Optional: activated
	STREETS	2000, 2006	South East Asia	Optional: activated

Tableau A2.3: GEOS-Chem biogenic emissions

	Inventory	Year	Region	Notes
Global	Megan	2005	Global	Default

Tableau A2.4: GEOS-Chem biomass emissions

	Inventory	Year	Region	Notes
Global	GFED2	2005	Global	Default

Tableau A2.5: GEOS-Chem aircraft, lightning and soil NO_x emissions

	Inventory	Year	Region	Notes
Aircraft				
Global	Bauchcum et al. [1996] and Metwally [1995]	1992	Global	Default
Lightning				
Global	GEOS-5 metadata	2005	Global	Default
Soil				
Global	Yienger et Levy	1995	Global	Default

Tableau A2.6: GEOS-Chem ship emissions

	Inventory	Year	Region	Notes
Global	Edgar	2000	Global	Default
	Arctas pre-mission planning	2001	Global	Optional: activated
Regional	EMEP	2005	Europe	Optional: activated

Tableau A2.7: GEOS-Chem SO₂ volcanic emissions

	Inventory	Year	Region	Notes
Global	Aerocom hindcast	2005	Global	Default

Details on the mass balance correction algorithm

Mass balances were not achieved because the given fluxes were not 100% accurate, as stated by GEOS-Chem model developers: *“When trying to rigorously balance one box, I found that the North-South flux is not 100% accurate [...] I got almost 2% (error) in one time step (a time step is either 15 or 30 minutes) for one box. In opposite hemispheres, the difference between the two calculations will tend to be opposite. One can imagine that errors will more or less cancel each other when balancing very large regions”* [from the GEOS-Chem wiki].

This situation is not limited to the North-South fluxes, according to personal communications (telephone conversations) with model developers indicating that vertical velocities might be an issue and could be wrong by a factor of 5 per each time step.

The correction algorithm uses the three basic principles:

1. The mass balance of each block must be respected.
2. Correction must pertain to the mass fluxes unless:
 - Transported quantities are higher than total input quantity
 - Total reconstructed deposition is higher than the expected total deposition value
3. Maintain, as best possible, the differences between directions, i.e.

$$(\text{East flux}-\text{West flux})_{\text{non corrected}} = (\text{East flux}-\text{West flux})_{\text{corrected}}$$

The implication of the correction is:

- An increase in the transport fluxes, which increases the input values in each of the air compartments, thus diminishing Deposition_{ii} (eq 2) and deposition_{ij} (eq4).

To ensure that these principles are respected, the correction algorithm uses the steps illustrated in Figure A2-1 (mass balance refers to eq. 4.2 in the paper).

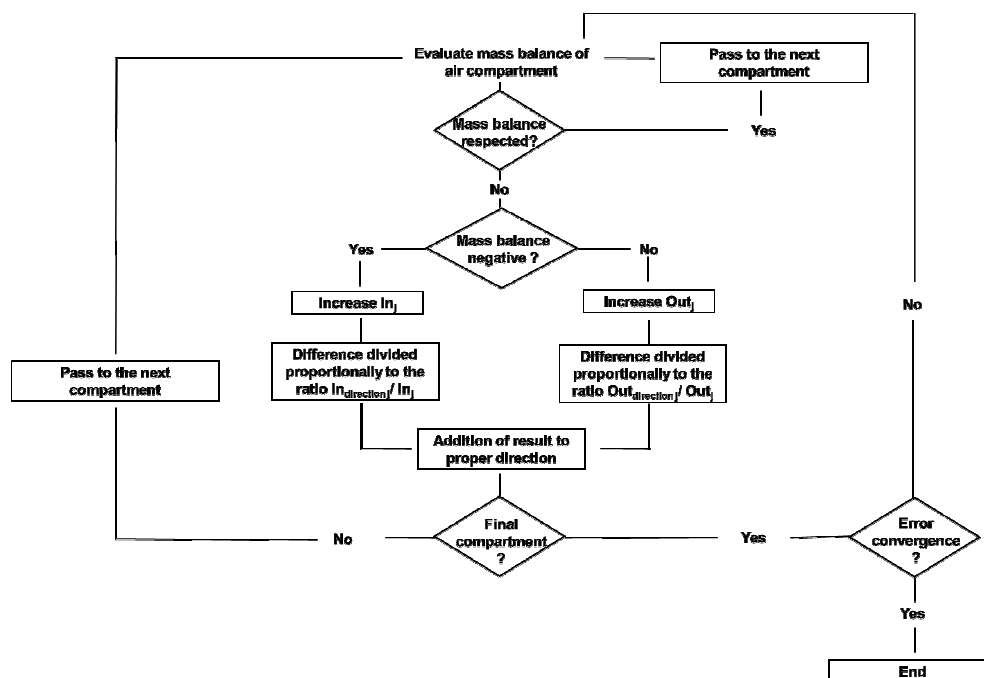


Figure A8-1: Mass balance correction algorithm steps

Figure A2-2 shows the error convergence from the correction algorithm for the NO_x – HNO_3 chemical species. The final iteration's maximum error is 20 kg, 40 kg and 15 kg for NO_x – HNO_3 , SO_2 – SO_4 and NH_x emissions, respectively.

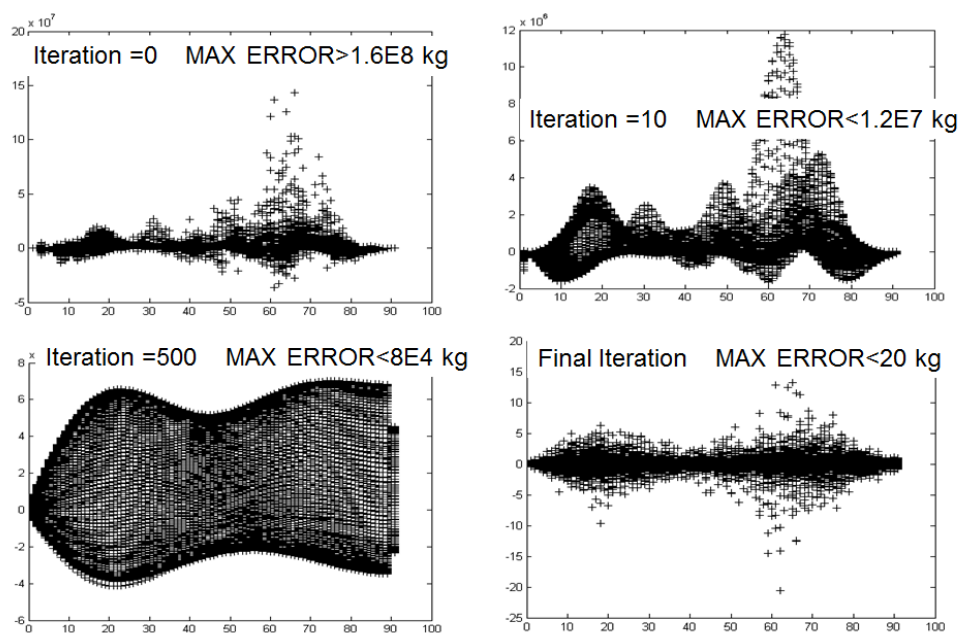
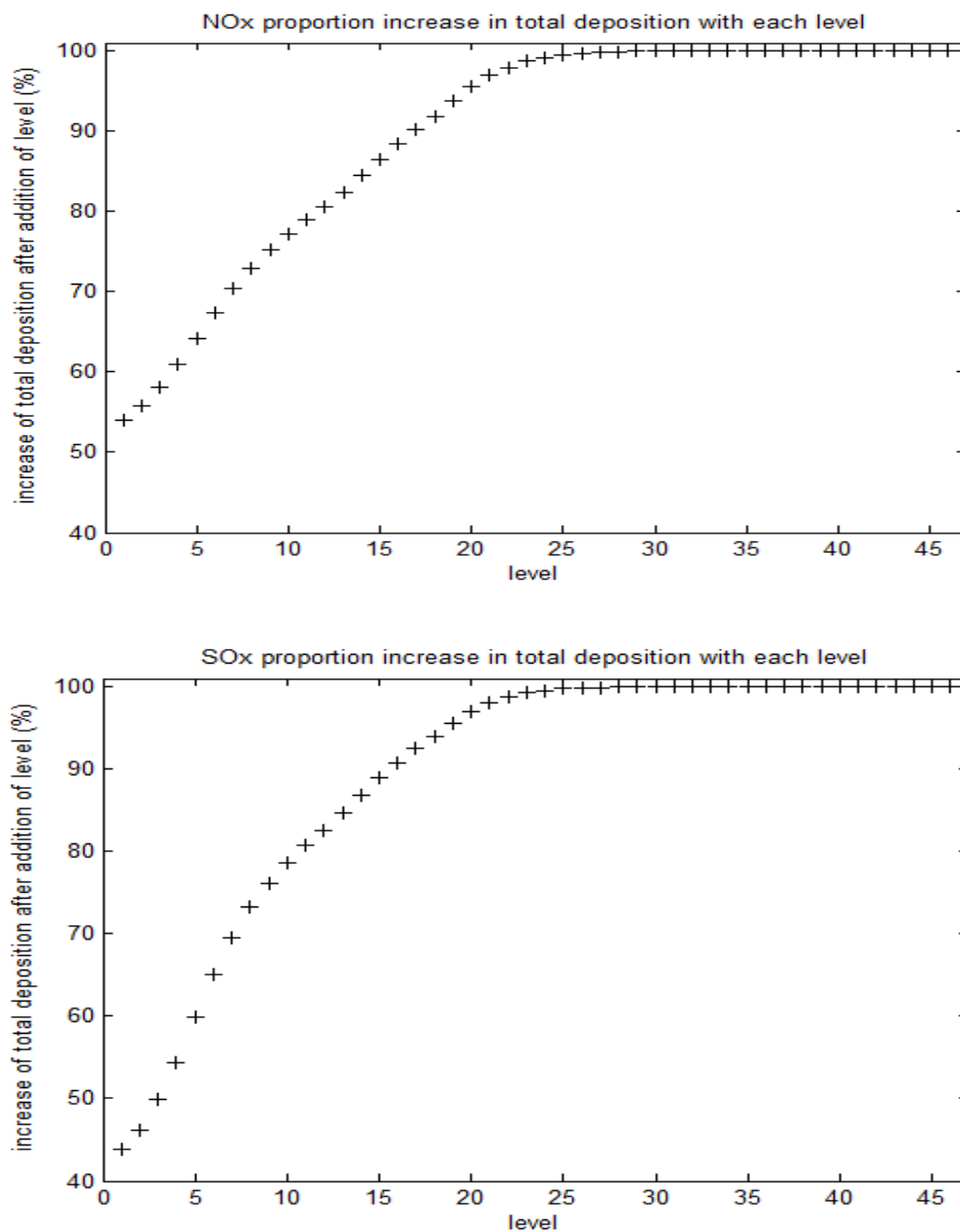


Fig A2-2: Mass balance correction algorithm results for the $\text{NO}_x\text{-HNO}_3$ chemical species (in kg of N) at iterations 0, 10, 500 and final. X-axis represents the grid location in a 2D format, the Y-axis, the mass balance error.

Altitude cut off criteria: GEOS-Chem deposition patterns per altitude level

Figure A2-3 shows the accumulated proportion of the total deposition as a function of the GEOS-Chem altitude level.



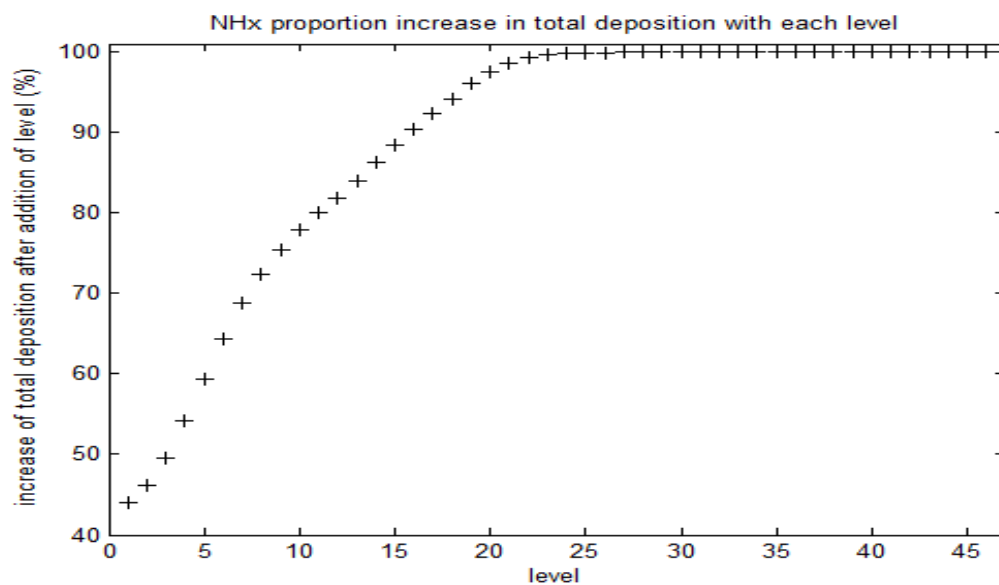


Fig A2-3: Accumulated proportion of the total deposition [%] as a function of the GEOS-Chem altitude level for $\text{NO}_x\text{-HNO}_3$, $\text{SO}_2\text{-SO}_4$ and NH_3 emissions, respectively

Cut off criteria on transported quantities

The 0.001% cut-off value was selected from a short evaluation of five different cut-off criteria (i.e. 0.1%, 0.01%, 0.001%, 0.0001% and 0.00001%) and three different horizontal grid locations for an SO₂-SO₄ emission. The calculation times for each cut-off criteria and location were also recorded. As seen, an increase in cut-off value from 0.001% to 0.00001% adds little deposition and increases the calculation time by a factor of 2. The cut-off value of 0.001% was finally selected because it constituted a sound trade-off between the obtained deposited proportion of emission and SRM calculation time.

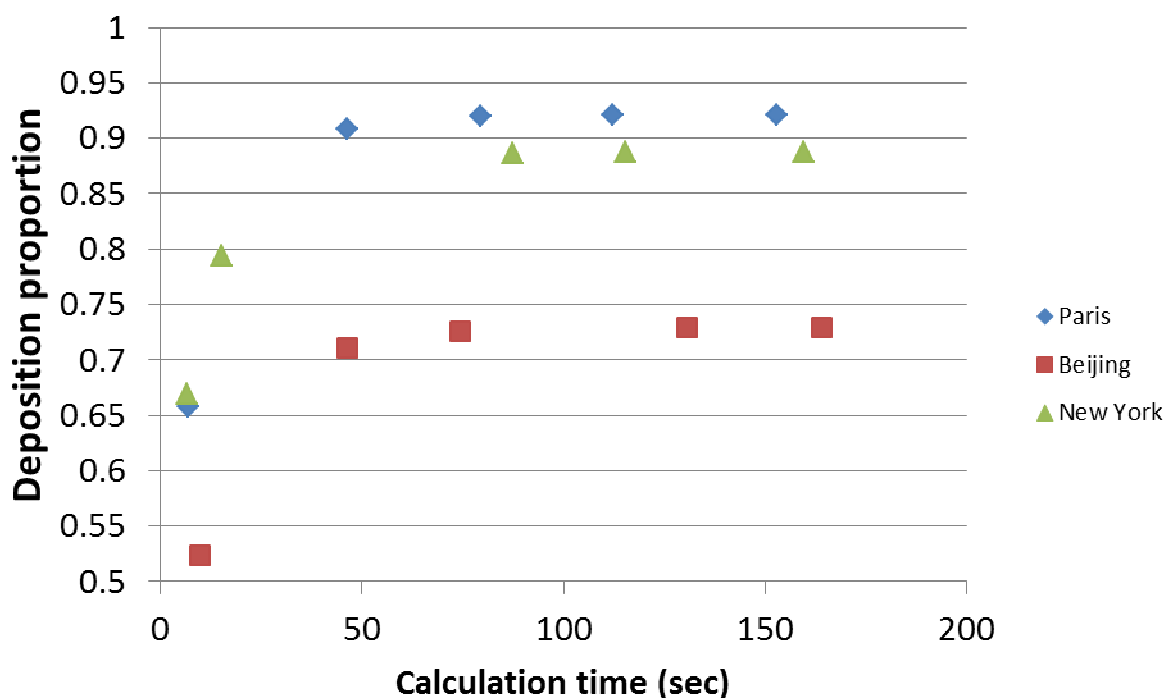


Fig A2-4: Test of different cut-off criteria (from left to right: 0.1%, 0.01%, 0.001%, 0.0001% and 0.00001%) for three different horizontal grid locations

Losses to the atmosphere final evaluation

Because of the cut-off criterion, we were unable to match the total deposition of GEOS-Chem with 100% accuracy. The cut-off value is applied to transported quantities in relative form to have the same fate factor accuracy. The following figure shows how further deposition was added to lessen the uncertainty created by the cut-off criterion.

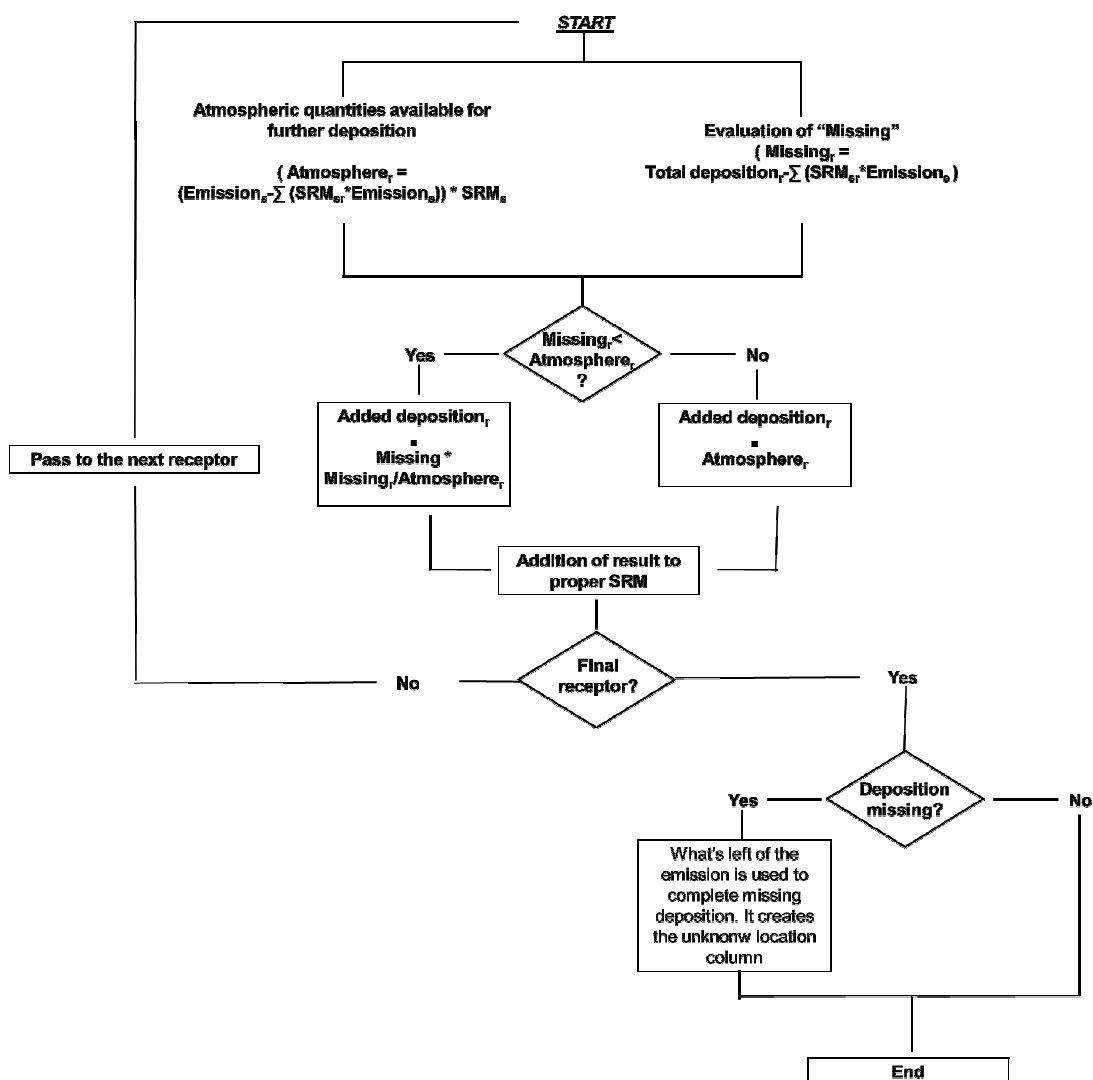


Fig A2-5: Schema of the "losses to the upper atmosphere final evaluation" algorithm

Deposition at the emission location

Due to equation 4.3, we have inherently assumed instantaneous mixing of emissions which favours long-range transport over local deposition. The following quotation explains we corrected this erroneous assumption of instantaneous mixing:

“The assumption of instantaneous mixing of emissions throughout the air parcel is not realistic. If no correction is made, the model will very often underestimate near-ground concentrations before complete mixing is achieved, particularly close to emission sources, and with this will underestimate the dry deposition flux. To compensate that a fraction of emissions is assumed to dry deposit directly within the emitting grid square in addition to what is calculated in a normal way, with the remainder available for mixing, transport and further depletion” [Tsyro, 2001]

Therefore, we defined “local deposition fraction” based on the work of Barret and Berge (1996) and Tuovinen and Krüger (1994) to correct this assumption. Used fractions are presented in Tableau A2.8.

Although we relied on the same principles, we did not use the same exact equations or values as the Lagrangian EMEP model. We applied the 0.04 fraction to every NO_x/HNO_3 species instead of solely the NO_2 as done by the Lagrangian EMEP model. For the SO_2/SO_4 emissions, we adopted simplified constant values, contrary to the Lagrangian EMEP model, which computes the fractions as a function of meteorology and emission height. For NH_3 emissions, we used the same correlation as the Lagrangian EMEP model based on precipitation data and dry deposition velocities which were, however, evaluated through global databases that are less accurate than the regional data used by EMEP.

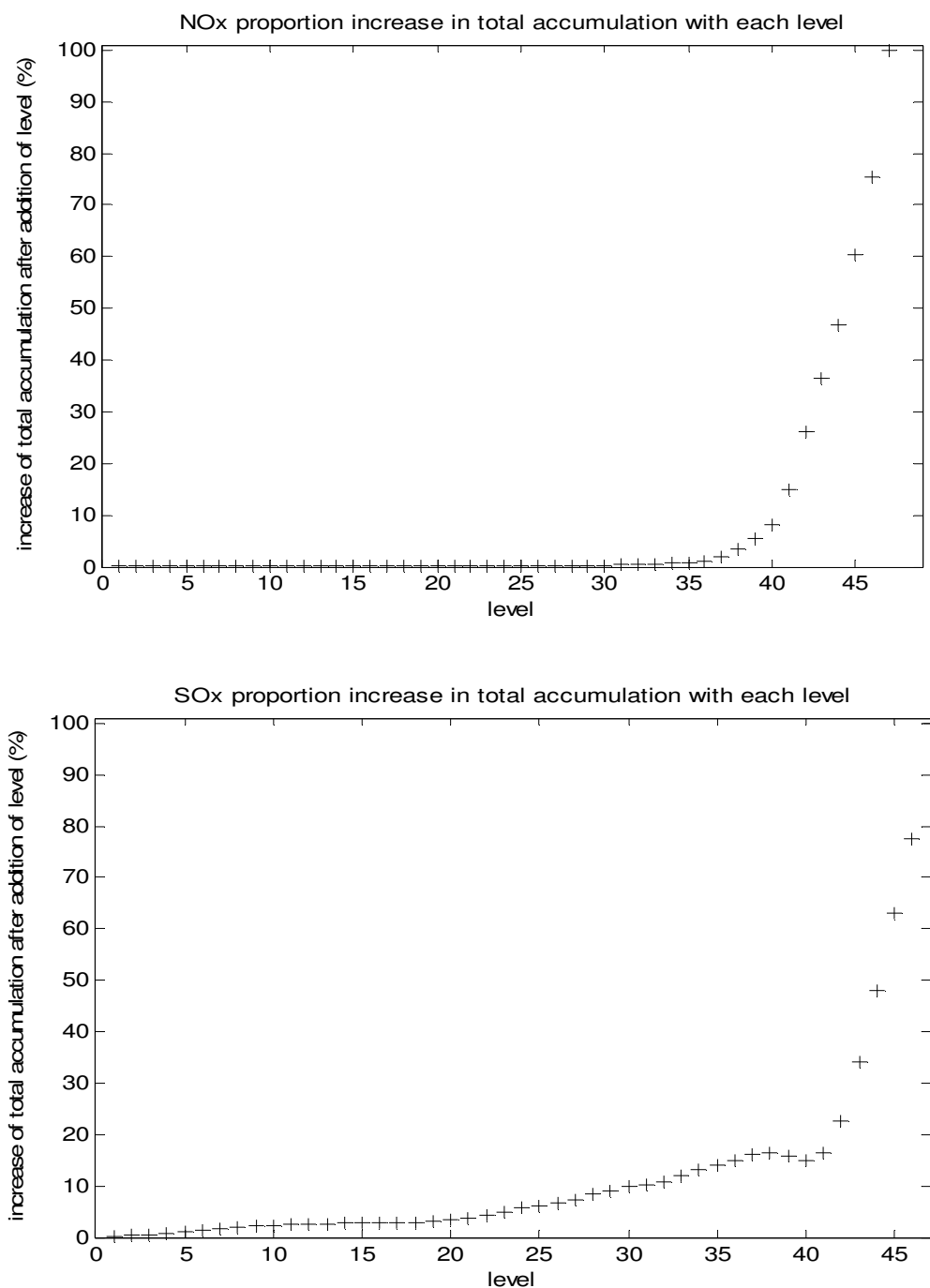
Tableau A2.8: Used local deposition fraction

	EMEP's fraction	Notes	References
NO _x - HNO ₃	0.04	The fraction for NO ₂ and applied to every species in the NO _x /NNO ₃ "family"	(Barret and Berge, 1996)
SO ₂ - SO ₄	0.15 (continental fraction) 0.1 (seas/oceans)	Fractions used by EMEP before they were refined with emission height and meteorological data	(Tuovinen J.-P. and Krüger O., 1994)
NH ₃	0.19 + (0.19*P/[P+v _{dNH3} /1.4E6]) *	Dry deposition velocities were taken from GEOS-Chem results	(Barret and Berge, 1996)

* Where P is the precipitation flux [cm/s] and v_{dNH3} the dry deposition velocity [cm/s].

Accumulation

Fig A2-6 shows the increase in total accumulation with the addition of new altitude levels. It shows that most accumulation of $\text{NO}_x\text{-HNO}_3$ or $\text{SO}_2\text{-SO}_4$ emissions occurs in the upper levels of the atmosphere. Accumulation of $\text{NH}_3\text{-NH}_4$ is more evenly distributed among the altitude levels but amounts to only 1% of the total emission.



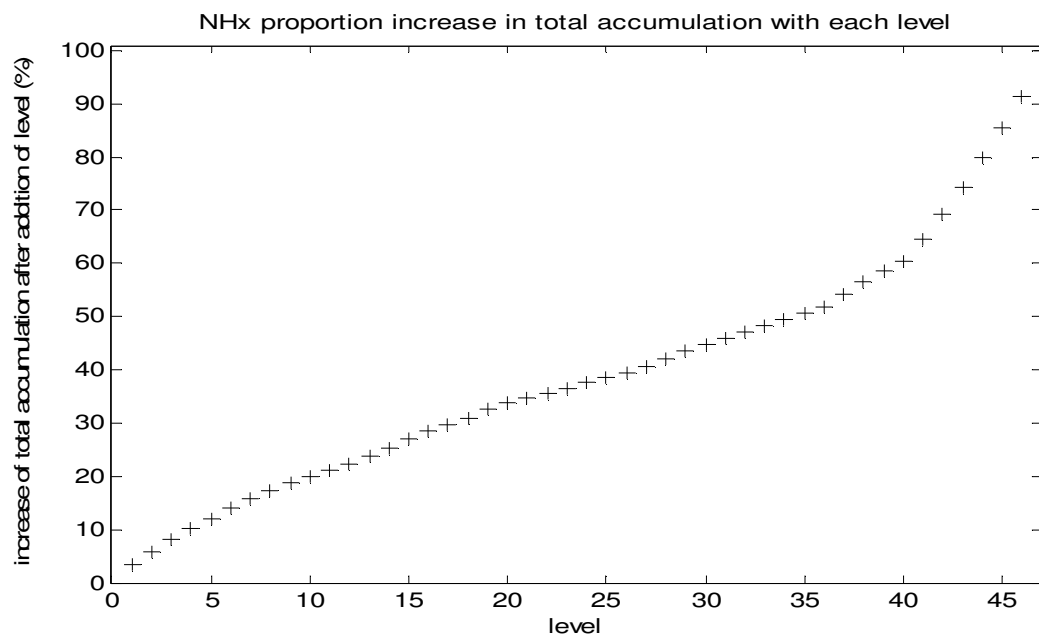


Figure A2-6: Accumulated proportion of the accumulation [%] as a function of the GEOS-Chem altitude level for $\text{NO}_x\text{-HNO}_3$, $\text{SO}_2\text{-SO}_4$ and NH_3 emissions, respectively

Differences between the unified EMEP model and GEOS-Chem

In this section, we focused on the differences related to the frame of reference, meteorological data, emission inventories and wet and dry deposition schemes. Information regarding the EMEP unified model was taken from Simpson et al. (2003). Information from GEOS-Chem came from its Wiki (http://wiki.seas.harvard.edu/geos-chem/index.php/Main_Page).

Tableau A2.9: Comparison between GEOS-Chem and the EMEP unified model

	GEOS-Chem	EMEP unified model
Frame of reference*	Eulerian	Eulerian
Spatial resolution	2°x2.5°	50x50 km
Meteorological data	GEOS-5 - a system of models integrated using the Earth System Modeling Framework (ESMF).	PARLAM-PS - a dedicated version of the HIRLAM (High Resolution Limited Area Model) Numerical Weather Prediction (NWP) model
Emission inventory over Europe		
Antropogenic	EMEP	EMEP
Biofuel	Yevich & Logan	EMEP (included in Anthropogenic)
Biogenic	MEGAN	Guenther et al[1993 and 1994]; Terrasson et al. [1995]
Biomass	GFD2	EMEP (included in Anthropogenic)
Aircraft NOx	Bauchcum et al. [1996] and Metwally [1995]	Gardner et al. [1997]
Lightning NOx	GEOS-5 metadata	Köhlner et al. [1995]
Soil NOx	Yienger et Levy	EMEP (included in Anthropogenic)
Ship	EMEP	EMEP
Volcanic SO2	Aerocom hindcast	Official submitted data
Wet deposition scheme		
Wet deposition	-Scavenging in wet convective updraft -In-cloud scavenging** -Below-cloud scavenging***	-In-cloud scavenging** -Below-cloud scavenging***
Dry deposition scheme		
Dry deposition****	Resistance in series	Resistance in series

***Frame of reference**

Both models are Eulerian models, which use a frame of reference fixed to the earth (or a source). The following paragraphs summarize some of the key aspects of these types of models, as reported by Whelpdale [1991].

The Eulerian approach divides the model domain into a two-or three-dimensional arrays of grid cells, fixed with respect to the earth's surface. Advection, diffusion, transformation, and removal are simulated in each grid cell by a set of mathematical expressions.

The major advantages of the Eulerian models are as follows:

- (1) Capable, within the limits of knowledge, of treating complex processes such as three-dimensional advection/diffusion combined with nonlinear interactions between various chemical species;
- (2) Operate in a geographically fixed grid in which input data fields, winds, emissions, and precipitation are defined;
- (3) Model output refers to the same grid and, therefore, information on the geographical distribution is automatically provided; and
- (4) Their potential sophistication makes them powerful tools for integrating knowledge of atmospheric process over the entire model domain.

The limitations of the Eulerian approach are as follows:

- (1) Its complexity demands large amounts of computer time, computer storage, and input data;
- (2) Because of the high cost of running these models, they are practical only for infrequent runs of limited duration; and
- (3) Undesirable computational dispersion associated with numerical integration of the advection equation exists.

**** In-cloud scavenging**

GEOS-Chem

The fraction F_i of soluble tracer in the gridbox scavenged by in-cloud scavenging over a time step Δt is:

$$F_i = f \times (1 - e^{-k_i \Delta t})$$

Where f is the horizontal areal fraction of the gridbox experiencing precipitation and k_i is a first order loss rainout rate constant.

a) F is either equal to for stratiform precipitation:

$$f = \max\left(\frac{Q}{k(L+W)}, f_{top}\right)$$

And where k is equal to:

$$k = k_{min} + \frac{Q}{(L+W)}$$

Q represent the rate of new precipitation; $L+W$ (treated as a constant) the condensed water content (liquid +ice) within the precipitation cloud; f_{top} the value of f in the layer overhead and k_{min} (a constant) is a minimum value of k .

b) or for convective precipitation:

$$f = \max\left(\frac{f_{max} \times Q \times \min(\Delta t / \tau, 1)}{Q \times \min(\Delta t / \tau, 1) + f_{max} \times k \times (L+W)}, f_{top}\right)$$

Where k , f_{max} , τ and $L+W$ are constants

EMEP

The in-cloud scavenging of a soluble component C is given by the expression:

$$\Delta C_{wet} = -C \frac{W_{in} \cdot P}{\Delta z \cdot \rho_w}$$

Where W_{in} (a constant) is the in-cloud scavenging ratio; P is the precipitation rate; Δz is the scavenging depth (assumed to be a constant) and ρ_w is the water density (a constant). They do not account for the effect of dissolved material that may be released if clouds or rain water evaporate.

***** Below-cloud scavenging**

GEOS-Chem:

The fraction F_i of soluble tracer in the gridbox scavenged by below-cloud scavenging over a time step Δt is:

$$F_i = f \times (1 - e^{-k'_i \times P / f \times \Delta t})$$

Where f is the horizontal areal fraction of the gridbox experiencing precipitation; k'_i is a first order loss rainout rate constant and P the precipitation rate through the bottom of the gridbox.

EMEP

The sub-cloud scavenging of the gases is calculated as:

$$\Delta C_{wet} = -C \frac{W_{sub} \cdot P}{\Delta z \cdot \rho_w}$$

where W_{sub} is the sub-cloud scavenging ratio (a constant).

****** Dry deposition**

Both the unified EMEP model and GEOS-Chem use the resistance in series equation to calculate dry deposition velocity. The dry deposited concentration is given by the following formula, where V_g is the dry deposition velocity, z_{ref} , the reference height, C_i the concentration at z_{ref} :

$$dC_i(z_{ref})/dt = -V_g(z_{ref}) \times C_i(z_{ref})/\Delta z$$

The dry deposition velocity is given by the following formula:

$$V_g = \frac{1}{R_a + R_b + R_c}$$

Where R_a is the aerodynamic resistance; R_b is the quasi-laminar layer resistance and R_c is the surface (canopy) resistance.

However, R_a , R_b and R_c are not calculated with the same equations. In GEOS-Chem, R_a and $R_{b,i}$ are calculated from the GCM meteorological variables [Jacob *et al* 1992]. Surface resistances $R_{c,i}$ are based largely on the Wesely [1989] canopy model with some improvements, including explicit dependence of canopy stomatal resistances on LAI [Gao and Wesely, 1995] and on direct and diffuse PAR within the canopy [Baldocchi *et al*, 1987]. The equations for the calculations of the three resistances are given in Simpson *et al.* (2003).

Validation: GEOS-Chem simulation emission and deposition levels

Tableau A2.10 provides the GEOS-Chem and estimated worldwide emissions and depositions levels from Dentener *et al* (2007) who carried out a multi-model evaluation of nitrogen and sulphur deposition at regional and global scales. Comparisons show that obtained GEOS-Chem values slightly underestimate emission and deposition levels but give similar global deposition on emission ratios.

Furthermore, it can be observed that the global mass balance in the GEOS-Chem simulation are respected since the obtained GEOS-Chem worldwide emission and re-emission levels are equal to the sum of the obtained GEOS-Chem worldwide deposition and worldwide accumulation levels in the atmosphere.

Tableau A2.10: Simulated GEOS-Chem chemical species compared to literature's world estimates

	NO_x	SO₂/SO₄	NH₃
Emission levels			
Obtained GEOS-Chem worldwide emission and re-emission levels [kg N or S/yr]	4.4E10	8.4E10	6.01E10
World emission levels estimations (Dentener, 2007)	5.05E10	9.02E10	6.4E10
Deposition levels			
Obtained GEOS-Chem worldwide deposition [kg N or S /yr]	3.9E10	8.1E10	5.99E10
World deposition estimation (from GEOS-Chem for the year 2000) (Dentener, 2007) [kg N or S /yr]	≈ 4.5E10	≈ 8.6E10	≈ 6.4E10
Deposition on emission ratios			
Obtained GEOS-Chem proportion	0.89	0.96	≈ 1.00
Litterature's proportion	0.89	0.96	≈ 1.00
Accumulation levels			
Obtained GEOS-Chem worldwide accumulation [kg N or S /yr]	5E9	3E9	2E8

Missing deposits

Quantification of areas that did not match GEOS-Chem deposition values were evaluated with the following formula. Resulting values are presented in the following maps.

$$\text{Relative error}_j = \frac{\left| \left(\sum_i \text{FF}_{i,j} \times \text{Emission}_i \right) - \text{Total deposition}_j \right|}{\text{Total deposition}_j} \quad (\text{A2.1})$$

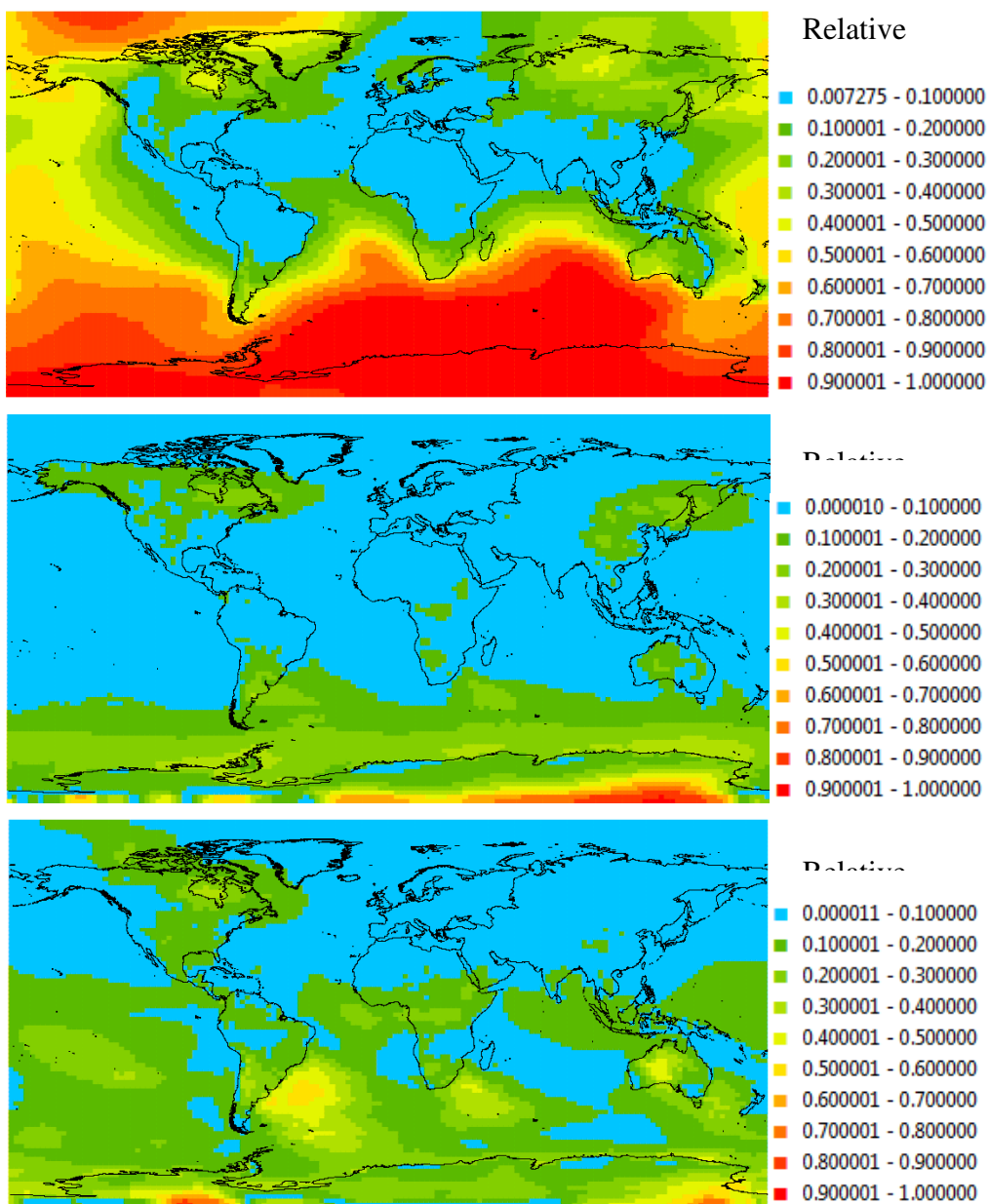


Figure A2-7: Regions affected by the “losses to the atmosphere final evaluation” for NO_x-HNO₃, SO₂-SO₄ (middle) and NH₃ (down) emissions

Areas affected by the “losses to the atmosphere final evaluation”

The quantification of areas that were affected by the “losses to the atmosphere final evaluation” was evaluated with the following formula. Resulting values are presented in the following maps. Regions that were more affected (i.e. $0.1 > \sum FF_{corrected} - \sum FF_{original} SRM \leq 0.3$) by the algorithm are located in northern North America and Asia. This situation may be explained by a simplification of the transport over the poles, which was considered as 2D instead of 3D. Consequently, transported quantities traveling north of the North Pole or south of the South Pole will not appear on the other side of the world. Furthermore, adding deposition in terms of calculated SRMs can lead to a misallocation of the link between emission and deposition.

$$Value_i = \sum_j FF_{i,j \text{ corrected}} - \sum_j FF_{i,j \text{ non-corrected}} \quad (A2.2)$$

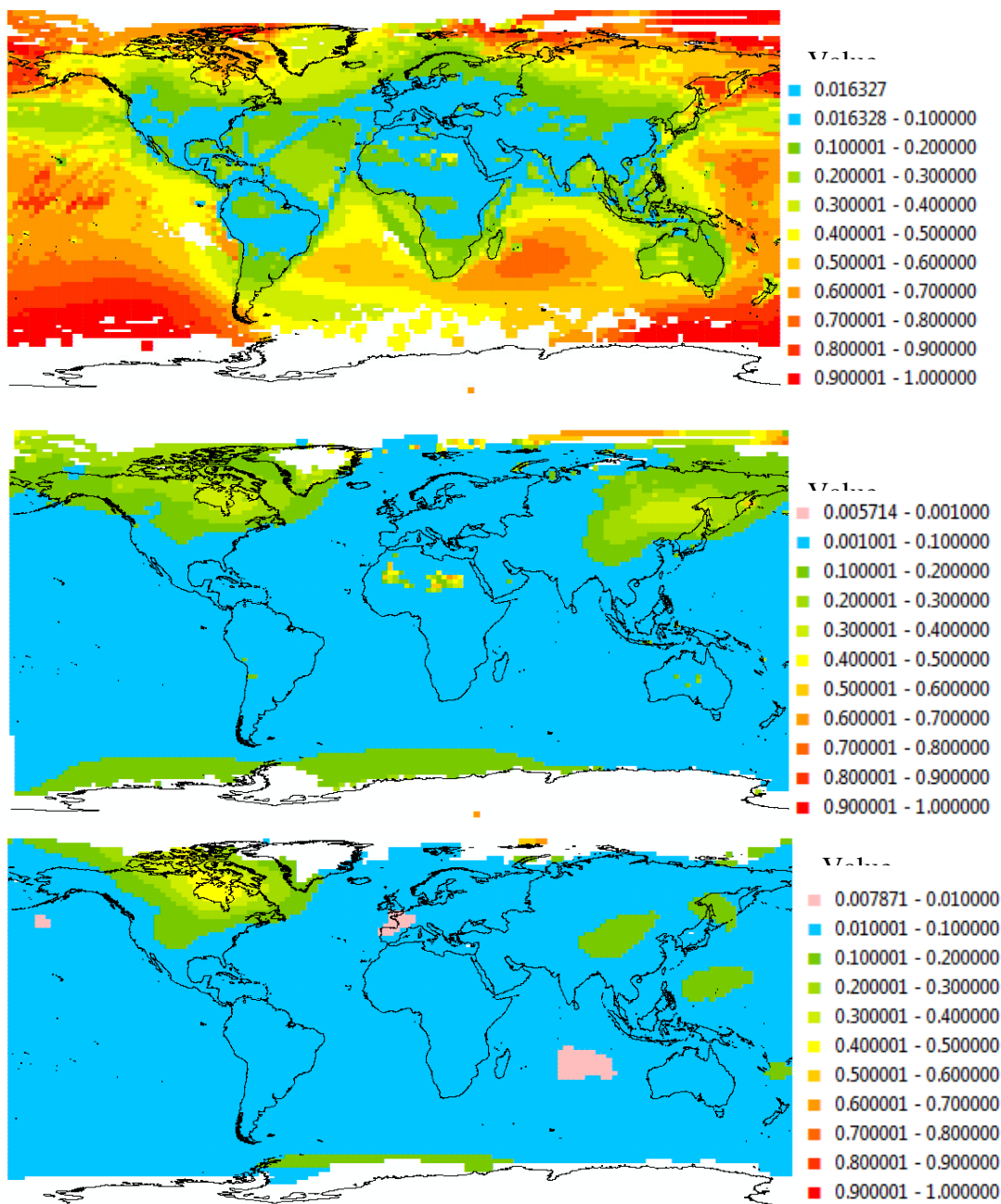


Figure A2-8: Regions affected by the “losses to the atmosphere final evaluation” for NO_x-HNO₃, SO₂-SO₄ (middle) and NH₃ (down) emissions

The “losses to the atmosphere final evaluation” versus the lowering of the cut-off criterion

To evaluate the consequences of using the “losses to the atmosphere final evaluation” algorithm instead of lowering the cut-off criterion, we calculated the relative error between fate factors corrected with the algorithm and the fate factors obtained by lowering the cut-off criterion from 0.001% (with algorithm) to 0.0001% (without algorithm). The following figure contains some example of obtained results.

$$\text{Relative error}_{i,j} = \frac{\text{FF}_{i,j \text{ corrected}} - \text{FF}_{i,j \text{ cut-off } 0.0001\%}}{\text{FF}_{i,j \text{ cut-off } 0.0001\%}} \quad (\text{A2.3})$$

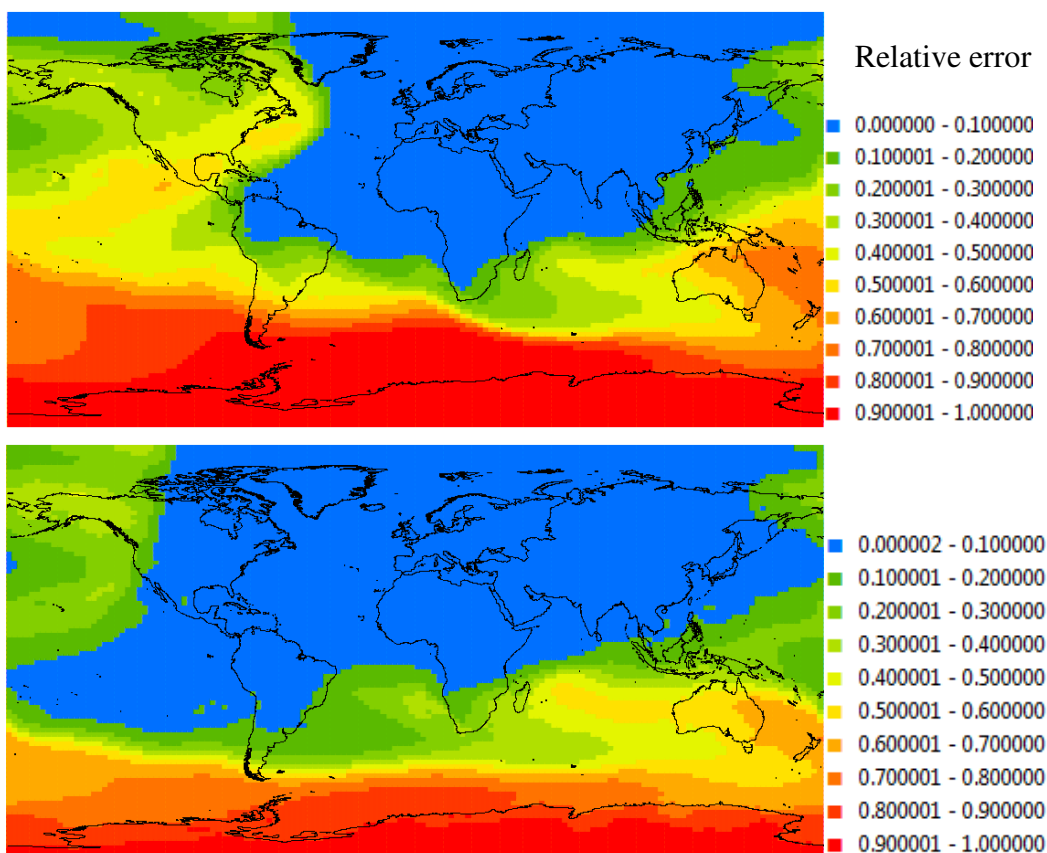


Figure A2-9: Relative error between corrected fate factors with the “losses to the atmosphere final evaluation” with a cut-off criterion of 0.001% and regular simulation with a cut-off criterion of 0.0001% for an emission of SO₂-SO₄ in Paris (up) and New York

Continental-level SRMs

Tableaux A2.11 to A2.13 provide the numerical FF values related to the continental SRMs. “Air” is the fraction of the emission that did not deposit; “Unknown” is a fraction of the emission that deposited but whose exact deposition location is unknown and “Water” is deposition occurring in seas/oceans and Antarctica.

Tableau A2.11: Continental SRMs for an emission of NO_x-HNO₃

NO _x /HNO ₃	North America	South America	Europe	Asia	Africa	Australia	Oceania	Air	Unknown	Water
North America	0.641	0.004	0.009	0.005	0.001	0.000	0.000	0.093	0.004	0.243
South America	0.008	0.591	0.000	0.001	0.007	0.001	0.000	0.119	0.025	0.248
Europe	0.001	0.000	0.499	0.119	0.030	0.000	0.000	0.124	0.027	0.200
Asia	0.005	0.000	0.025	0.598	0.013	0.001	0.000	0.106	0.012	0.240
Africa	0.000	0.004	0.007	0.029	0.615	0.000	0.000	0.125	0.045	0.175
Australia	0.000	0.000	0.000	0.023	0.000	0.468	0.002	0.123	0.045	0.338
Oceania	0.001	0.000	0.000	0.003	0.000	0.004	0.166	0.120	0.019	0.689

Tableau A2.12: Continental SRMs for an emission of NH₃

NH ₃	North America	South America	Europe	Asia	Africa	Australia	Oceania	Air	Unknown	Water
North America	0.734	0.006	0.011	0.003	0.000	0.000	0.000	0.009	0.055	0.183
South America	0.005	0.773	0.005	0.004	0.015	0.000	0.000	0.001	0.000	0.198
Europe	0.000	0.000	0.668	0.063	0.007	0.000	0.000	0.009	0.126	0.126
Asia	0.004	0.000	0.012	0.731	0.002	0.000	0.000	0.009	0.091	0.151
Africa	0.001	0.000	0.014	0.066	0.760	0.000	0.000	0.003	0.003	0.152
Australia	0.001	0.000	0.000	0.028	0.000	0.572	0.003	0.000	0.000	0.395
Oceania	0.000	0.001	0.000	0.003	0.000	0.004	0.324	0.001	0.000	0.667

Tableau A2.13: Continental SRMs for an emission of SO₂/SO₄

SO ₂ /SO ₄	North America	South America	Europe	Asia	Africa	Australia	Oceania	Air	Unknown	Water
North America	0.649	0.004	0.009	0.012	0.001	0.000	0.000	0.033	0.006	0.286
South America	0.016	0.587	0.001	0.002	0.016	0.002	0.000	0.008	0.000	0.369
Europe	0.001	0.000	0.586	0.121	0.019	0.000	0.000	0.067	0.027	0.179
Asia	0.009	0.000	0.023	0.684	0.009	0.000	0.000	0.049	0.021	0.205
Africa	0.001	0.001	0.012	0.025	0.652	0.001	0.000	0.005	0.000	0.302
Australia	0.000	0.001	0.000	0.029	0.000	0.494	0.005	0.013	0.000	0.457
Oceania	0.006	0.003	0.000	0.029	0.000	0.003	0.165	0.040	0.000	0.752

Grid comparison of developed and GEOS-Chem simulation rerun for a large region SRMs

Results show a good grid-level correlation for North America (i.e Canada and rest of North America) between the developed SRMs and the ones from the GEOS-Chem simulations. Results show that most fate factors are inside a $\pm 50\%$ range.

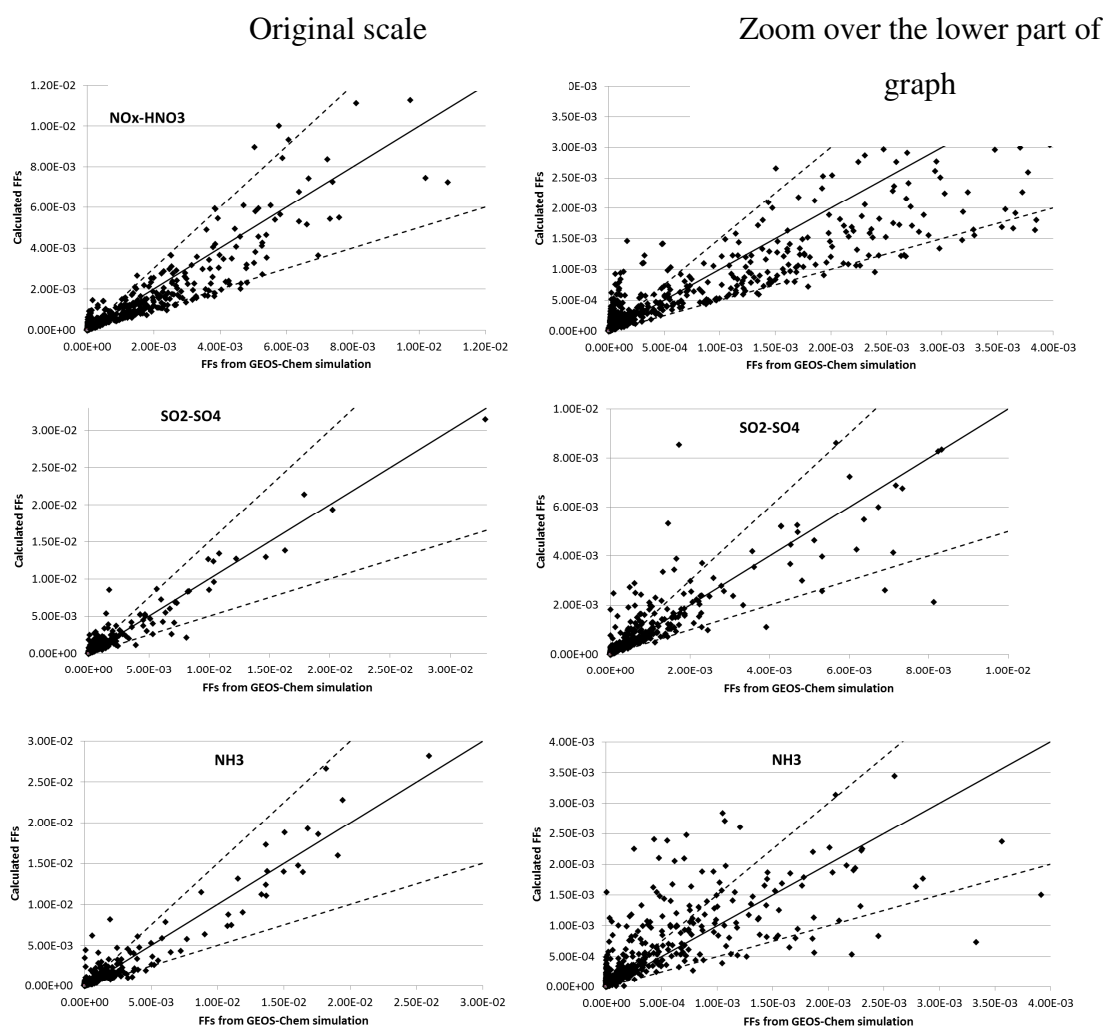


Figure A2-10: (Left) Comparison between the fate factors calculated from SRMs in this paper (y-axis) and those calculated with GEOS-Chem simulations (x-axis) for NO_x-HNO₃, SO₂-SO₄ and NH₃, respectively. The line represents the perfect match, the dotted lines the $\pm 50\%$ interval from the perfect match. (Right) Zoom of left figures

Comparison with the unified EMEP model

Figure A2-11 compares obtained country level fate factors with those obtained with the unified EMEP model. The country-based fate factor expresses the deposition in each of the countries as a function of one of the 13 emitting countries.

In absolute values (average relative values in parentheses), the maximum deviation for large countries (i.e. France, Germany, Spain, United Kingdom) between obtained fate factors and those from EMEP is 0.04 (25.5%), 0.061 (18.3%) and 0.06 (24.1%) for emissions of NO_x/HNO_3 , SO_2/SO_4 and NH_3 , respectively. These values increase to 0.055 (36.2 %), 0.072 (38.4%) and 0.084 (45.9%) for smaller countries (i.e. Denmark, Norway, Belgium, Netherlands and Czech Republic). The maximum deviations for Ireland, Sweden and Italy are similar to those obtained from smaller countries, with the exception of NH_3 for Ireland (absolute: 0.183, relative: 50%) and SO_2/SO_4 for Sweden (absolute 0.127, relative: 34%) and Italy (absolute: 0.153, relative 54%). However, Switzerland is always higher, with maximum deviations of 0.064 (55%), 0.139 (65.8%) and 0.222 (64%). Maximum fate factor errors always occur at the emitting country location.

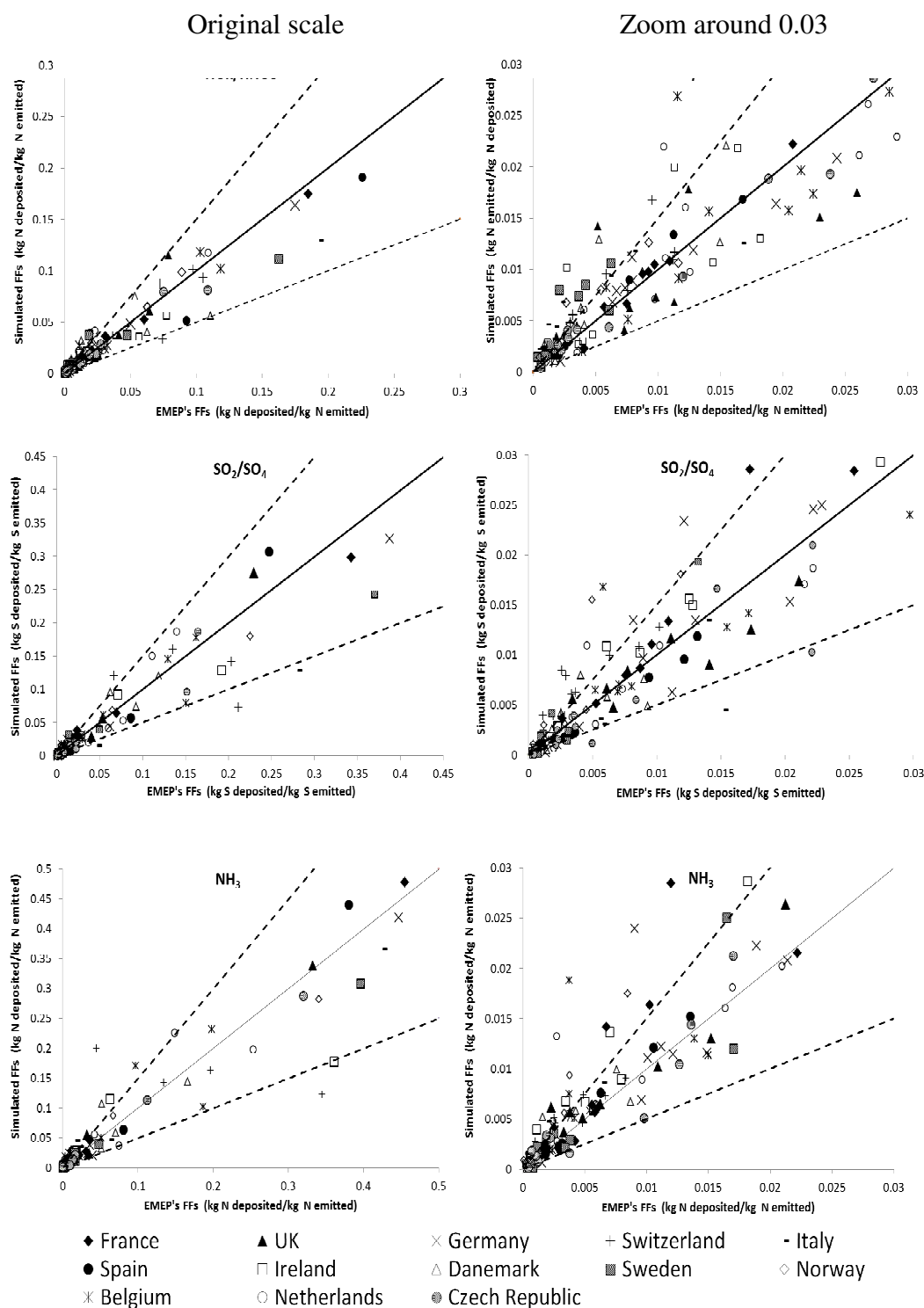


Figure A2-11: (Left) Comparison between the fate factors calculated from SRMs in this paper (y-axis) and those calculated by EMEP (x-axis) for $\text{NO}_x\text{-HNO}_3$, $\text{SO}_2\text{-SO}_4$ and NH_3 , respectively. The line represents the perfect match, the dotted lines the $\pm 50\%$ interval from the perfect match. (Right) Zoom of left figures below 0.03.

Seeing as there might be a low dependency between our approach and the EMEP model on the matter of the local deposition correction, we also provided the same comparison using the fate factors prior the refinement. Figure A2-12 compares the obtained fate factors with the ones from the unified EMEP model without the local correction.

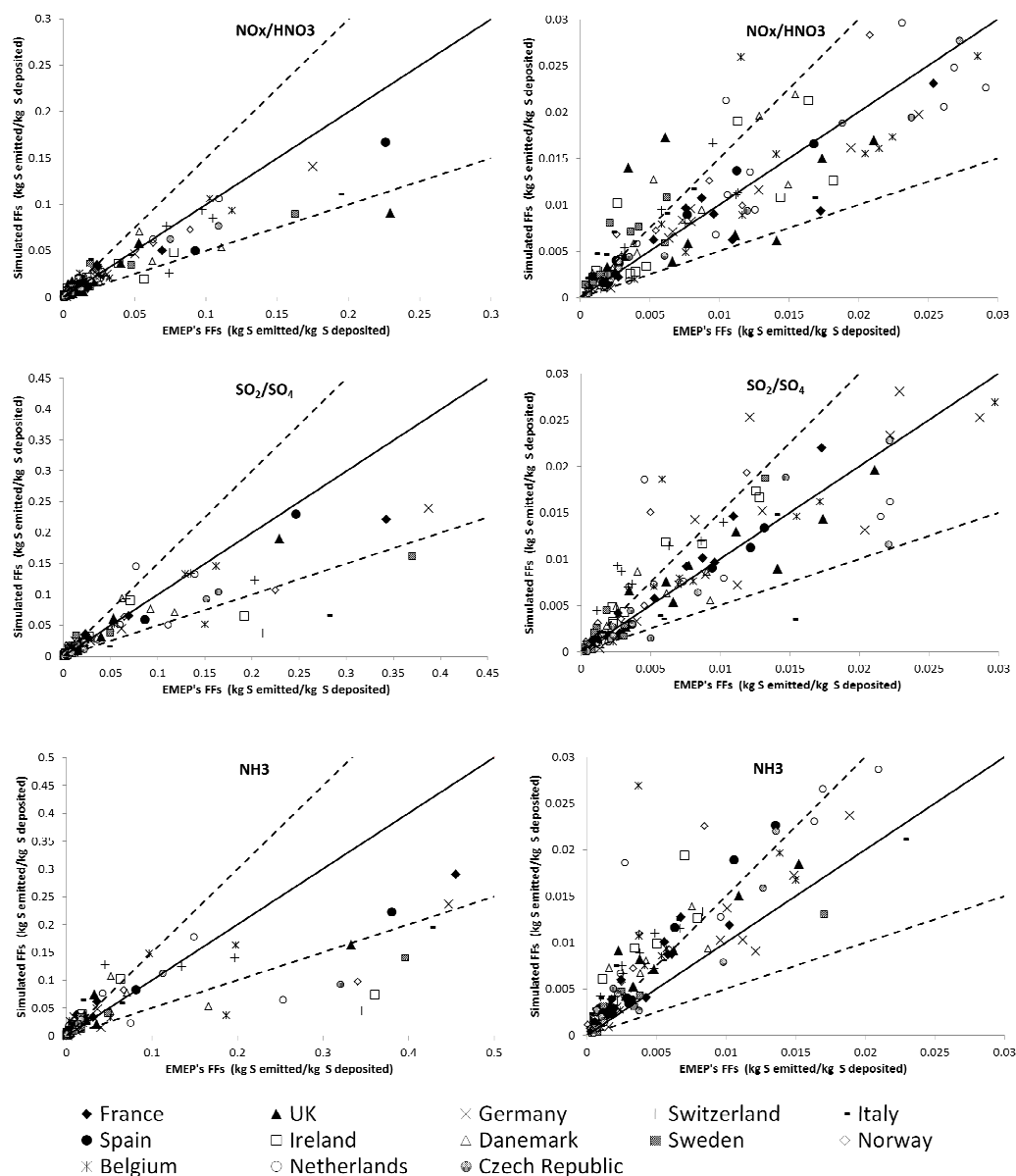


Figure A2-12: (Left) Comparison between the fate factors calculated from SRMs without the local correction values (y-axis) and those calculated by EMEP (x-axis) for NO_x - HNO_3 , SO_2 - SO_4 and NH_3 , respectively. The line represents the perfect match, the dotted lines the $\pm 50\%$ interval from the perfect match. (Right) Zoom of left figures below 0.03.

Figure A2-13 makes the same comparison but without showing the emitting country that is mostly affected by the local correction.

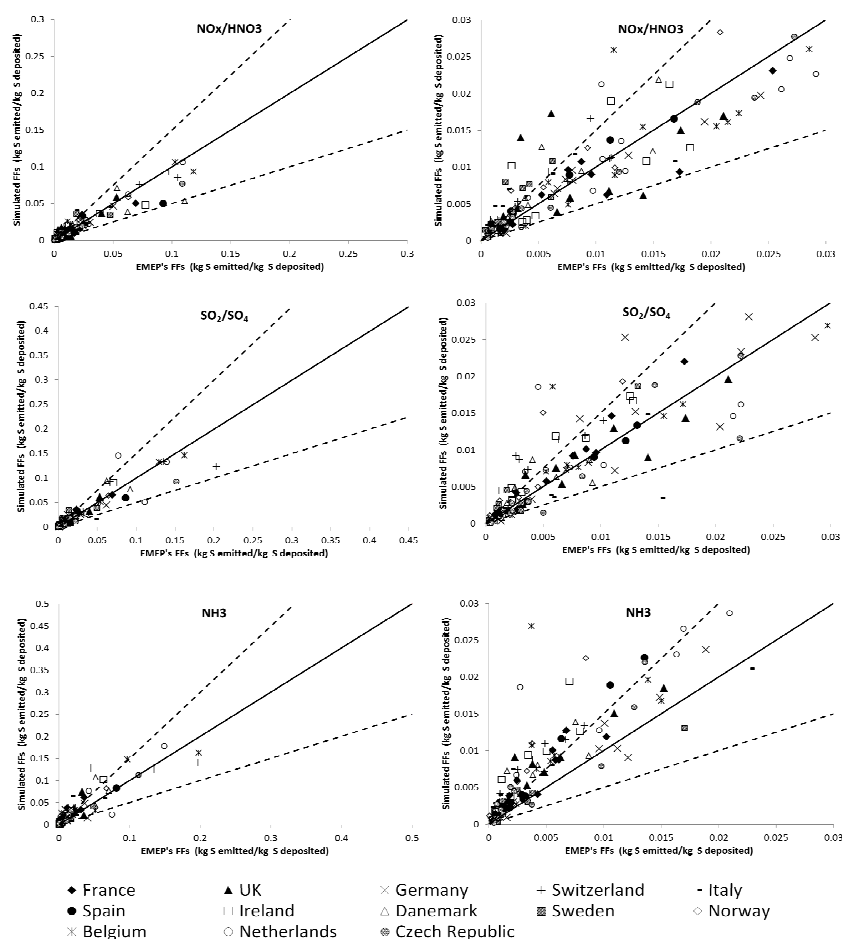


Figure A2-13: (Left) Comparison between the fate factors for long range calculated from SRMs without the local correction values (y-axis) and those calculated by EMEP (x-axis) for $\text{NO}_x\text{-HNO}_3$, $\text{SO}_2\text{-SO}_4$ and NH_3 respectively. The line represents the perfect match, the dotted lines the $\pm 50\%$ interval from the perfect match. (Right) Zoom of left figures below 0.03.

As evident in Figure A2-12, the emitting countries' fate factors are always lower than those from EMEP, but long-range fate factors for emissions of $\text{NO}_x\text{-HNO}_3$ or $\text{SO}_2\text{-SO}_4$ are still within the $\pm 50\%$ of the prediction. However, for the NH_3 emissions (as the correction factor are more important), it can be observed that long-range fate factors are concentrated in the upper part of the $+50\%$ interval with more data (than the other pollutants) outside the range.

Références pour l'Annexe 2

Baldocchi, D.D., B.B. Hicks, and P. Camara, A canopy stomatal resistance model for gaseous deposition to vegetated surfaces, *Atmos. Environ.* **21**, 91-101, 1987.

Barret, K., Berge, E., 1996. Transboundary air pollution in Europe: Estimated dispersion of acidifying agents and of near surface ozone, in: EMEP (Ed.). The Norwegian Meteorological Institute,.

Bey, I., Jacob, D., Yantosca, R., Logan, J., Field, B., Fiore, A., Li, Q., Liu, H., Mickley, L., Schultz, M., 2001. Global modeling of tropospheric chemistry with assimilated meteorology: Model description and evaluation. *Journal of Geophysical research* 106, 23073-23905.

Dentener, F., 2007. IPCC Results: comparison with measurements.

Gao, W. and M.L. Wesely, Modeling gaseous dry deposition over regional scales with satellite observations, 1. Model development, *Atmos. Environ.*, '29, 727-737, 1995.

Gardner, R.M. , Adams, K. , Cook, T. , Deidewig, F. , Ernedal, S. , Falk, R. , Fleuti, E. , Herms, E. , Johnson, C.E. , M. Lecht, D.S. Lee , Leech, M. , Lister, D. , Masse, B. , Metcalfe, M. , Newton, P. , Schmitt, A. , Vandenberg, C. , and Drimmelen, R. Van, 1997, The ANCAT/EC global inventory of NO_x emissions from aircraft, *Atmospheric Environment*, 31, No. 12, 1751-1766.

GEOS-Chem wiki. 2012. Mass Flux (ND24/25/26). Retrieved January 12 2012. http://wiki.seas.harvard.edu/geos-chem/index.php/Mass_Flux_%28ND24/25/26%29

Guenther, A.B. , Zimmerman, P.R. , Harley, P.C. , Monson, R.K. , and Fall, R. , 1993, Isoprene and monoterpene rate variability: model evaluations and sensitivity analyses, *J. Geophys. Res.*, 98, No. D7, 12609-12617.

Guenther, A. , Zimmerman, P. , and Wildermuth, M. , 1994, Natural volatile organic compound emission rate estimates for U.S. woodland landscapes, *Atmospheric Environment*, 28, 1197-1210.

Jacob, D.J., et al, *Deposition of ozone to tundra*, *J. Geophys. Res.*, **97**, 16473-16479, 1992.

Köhler, I. , Sausen, R. , and Klenner, G. , 1995, NO_x production from lightning, The Impact of NO_x emissions from aircraft upon the atmosphere at flight altitudes 8-15 km (AERONOX), edited by U.Schumann, final report to the Commission of the European Communities, Deutch Luft und Raumfahrt, Oberpfaffenhofen, Germany.

Simpson D., Fagerli H., Jonson J.E., Tsyro S., Wind, P. and Tuovinen J.-P., 2003. Transboundary Acidification, Eutrophication and Ground Level Ozone in Europe PART I: Unified EMEP Model Description. <http://emep.int/UniDoc/report.html>, Accessed January 12th, 2012.

Tarrasón, L. , Turner, S. , and Floisand, I. , 1995, Estimation of seasonal dimethyl sulphide fluxes over the North Atlantic Ocean and their contribution to European pollution levels, *J. Geophys. Res.*, 100, 11623-11639.

Wesely, M. L., Parameterization of surface resistance to gaseous dry deposition in regional-scale numerical models, *Atmos. Environ.*, **23**, 1293-1304, 1989.

Whelpdale, D. (1991). Methods for assessing exposure of human and non-human biota: Geographically-based atmospheric models. Wiley & sons.

Tsyro, S.G., 2001. Description of the Lagrangian Acid Deposition Model, in: EMEP (Ed.). <http://www.emep.int/acid/ladm.html>. Accessed May 3, 2011.

Tuovinen J.-P., Krüger O., 1994. Re-evaluation of the local deposition correction in the Lagrangian EMEP model, in: EMEP/MSC-W Note 4/94 (Ed.). Norwegian Meteorological Institute,.

ANNEXE 3 – Supporting information associé au manuscrit 2 (Chapitre 5)

Indicator calculations

The multiple layer approach of the PROFILE model makes it possible to assess the indicator values based on roots distribution across the soil layers. Roots distribution according to depth was estimated using equation SI 1.

$$Y = 1 - \beta^d \quad (\text{A 3.1})$$

Where Y is the cumulative root fraction (between 0 and 1) from the soil surface to depth “d” [cm] and β is the fitted “extinction coefficient”. Known β values and calculated roots distribution as a function of terrestrial biomes are supplied in Tableau A3.1.

Tableau A3.1: β and roots distribution fractions according to terrestrial biomes

Terrestrial Biomes	β	Fraction of roots by layers of 20 cm				
		0-20 cm	20-40 cm	40-60 cm	60-80 cm	80-100 cm
Boreal forest	0.943	0.69	0.21	0.07	0.02	0.01
Crops	0.961	0.55	0.25	0.11	0.05	0.02
Desert	0.975	0.40	0.24	0.14	0.09	0.05
Sclerophyllous shrubs	0.964	0.52	0.25	0.12	0.06	0.03
Temperate coniferous forest	0.976	0.38	0.24	0.15	0.09	0.06
Temperate deciduous forest	0.966	0.50	0.25	0.13	0.06	0.03
Temperate grassland	0.943	0.69	0.21	0.07	0.02	0.01
Tropical deciduous forest	0.961	0.55	0.25	0.11	0.05	0.02
Tropical evergreen forest	0.962	0.54	0.25	0.11	0.05	0.02
Tropical grassland savanna	0.972	0.43	0.25	0.14	0.08	0.04
Tundra	0.914	0.83	0.14	0.02	0.00	0.00
Mixed forest (mean between temperate coniferous and temperate deciduous forests)	0.971	0.44	0.25	0.14	0.08	0.04

The single value indicator (1 per soil layer “n”) was aggregated into a single value indicator using the distribution of roots as weighting factors.

$$\text{Indicator} = \sum_n \text{Indicator}_n \times \text{Root fraction}_n \quad (\text{A } 3.2)$$

Similarly, the critical aluminium concentration criteria was calculated using equations (4) and (5) with pH critical values according to soil layer “n” (4-4.2 for first 20 cm and 4.4 for the rest), K_{gibbs} (related to log K_{Al}) and roots distribution fraction.

$$[\text{Al}^{3+}] = K_{\text{gibbs}} \times [\text{H}^+]^3 \quad (\text{A } 3.3)$$

$$[\text{Al}^{3+}]_{\text{critical}} = \sum_n K_{\text{gibbs}_n} \times (10^{-\text{pH}_{\text{critical}}})_n^3 \times \text{Root fraction}_n \quad (\text{A } 3.4)$$

Dataset creation: Wet and dry atmospheric deposition

The deposition levels of acids were obtained from a $2^\circ \times 2.5^\circ$ GEOS Chem [1] simulation for 2005, which is representative of the average from 1961 to 1990 according to the National Climatic Data Center of the National Oceanic and Atmospheric Administration [2]. Deposition values were calculated in terms of kg N or S deposited/yr.

The evaluation of base cations deposition is a problem in global-scale analysis, since there is no available data on global base cations deposition fluxes [3]. In the absence of global-scale estimates, soil dust deposition was used as a proxy for calcium deposition [4]. The portion of calcium in dust deposits was averaged at 10% following Kuylstierna et al. [4]. Soil mineral dust deposition was evaluated from the Tegen and Fung $4^\circ \times 5^\circ$ grid resolution model [5].

Sodium, chloride, magnesium and potassium deposits were derived using a similar approach, and sea salt deposition was used as a proxy since it represents an important contributor of sodium, chloride and magnesium. Sea salt deposition levels were estimated with the GEOS Chem’s “sulphate within sea-salt” deposits and global “sulphate within sea-salt” ratio [6]. Magnesium represents 2% of the sea salt deposits, while sodium and chloride represents a share of 30% and 55% respectively.

Using measured values from the National Atmospheric Deposition program database for 2005 [7], the deposition value of potassium was correlated with the Tegen and Fung 4°x5° grid resolution model [5] as about 2%.

To be used in PROFILE, the values were transformed into keq/ha/yr using equation (A3.5):

$$\text{Deposition [Keq/ha/yr]} = \text{Deposition [kg/ha/yr]} \times \text{Valence [-]} / \text{Molecular weight [g/mol]} \quad (\text{A3.5})$$

Dataset creation: Annual mean precipitations and air temperature

Values were obtained from the WorldClim-Global climate database [8] on a 10 arc-minute resolution. Figure A5-2 illustrates the worldwide precipitation and temperature distribution.

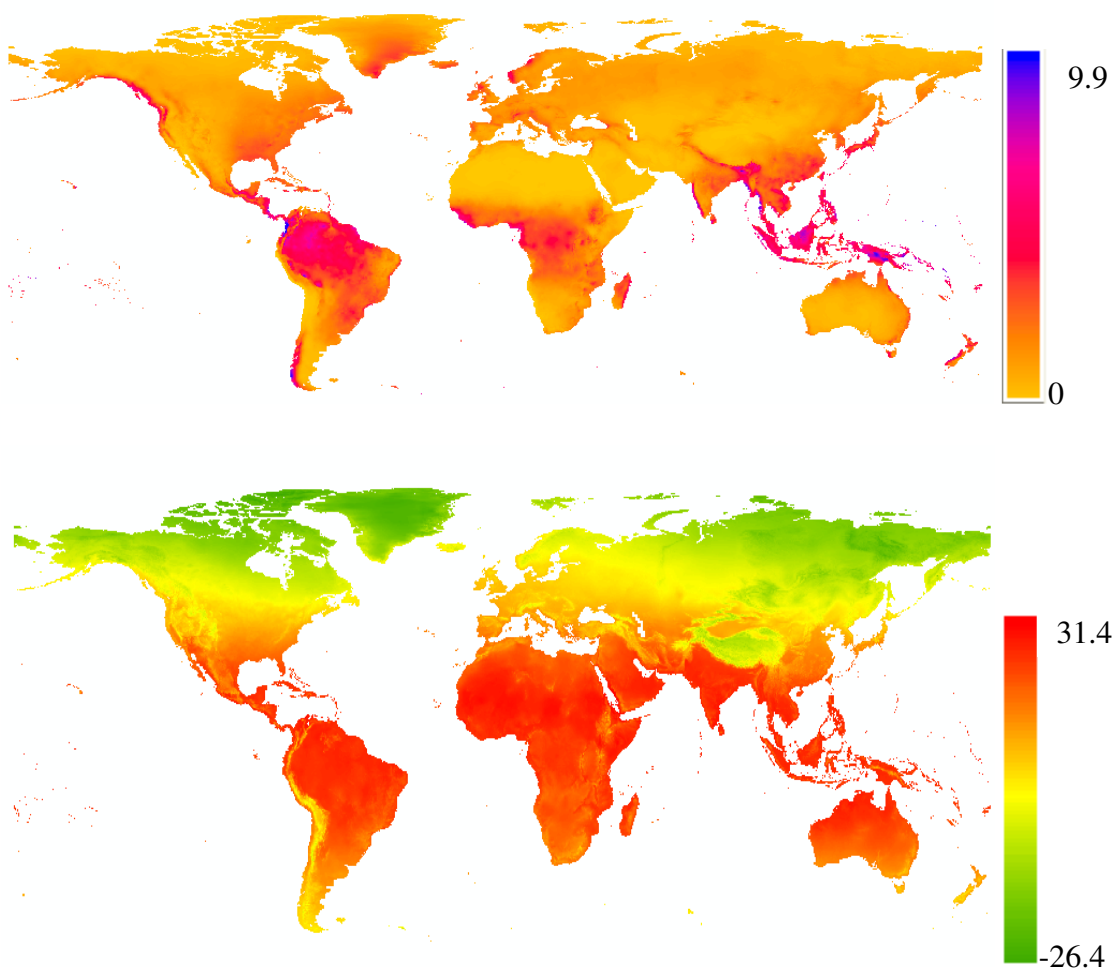


Figure A3-2: Annual average precipitation levels (up) and air temperature (down)

Dataset creation: Soil properties

The ISRIC-Wise worldwide database differentiates areas based on soil properties on a 5 by 5 arc-minute resolution. Figure A3-3 illustrates this differentiation. Colors are indicative of the presence of an ecosystem.

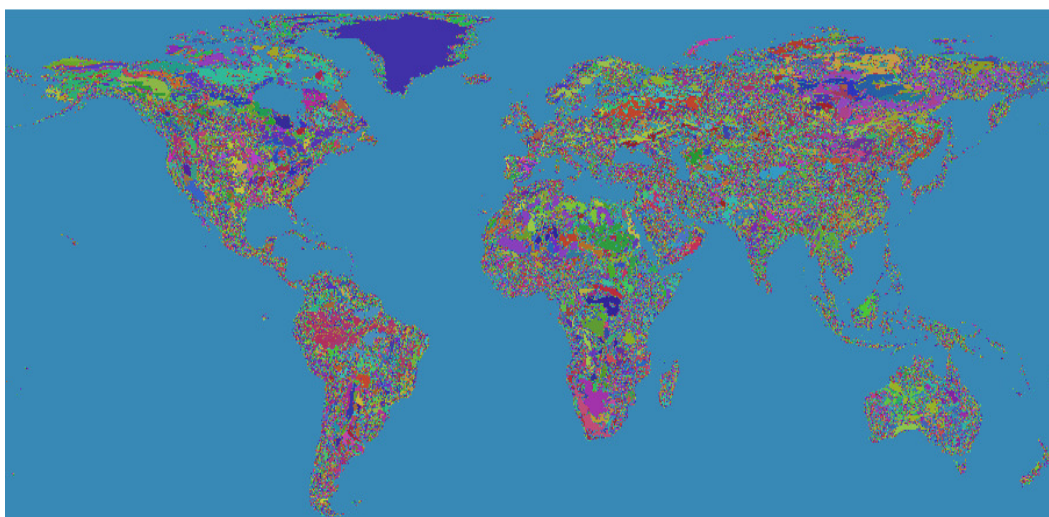


Figure A3-3: Differentiated areas based on soil properties

Dataset creation: Water content

Water content [m^3 water/ m^3 soil] was considered as a fraction (80%) of the field capacity (maximum water content), which is a function of soil texture from the ISRIC-Wise worldwide database. Tableau A3.2 presents field capacity and permanent wilting point (minimum water content to sustain vegetation life) values obtained from Rawls et al. [9].

Tableau A3.2: Field capacity and permanent wilting point according to FAO soil texture classes

FAO soil texture class	Field capacity (m ³ water/ m ³ soil)	Permanent wilting point (m ³ water/ m ³ soil)
Sand	0.091	0.033
Loamy sand	0.125	0.055
Sandy loam	0.207	0.095
Sandy clay loam	0.255	0.148
loam	0.27	0.117
silt loam	0.33	0.133
silt	0.32	0.17
clay loam	0.318	0.197
silty clay loam	0.366	0.208
sandy clay	0.339	0.239
silty clay	0.387	0.25
clay	0.396	0.272

Dataset creation: Soil bulk density

Soil bulk density [kg/m³] was obtained from ISRIC-Wise worldwide.

Dataset creation: Water entering and exiting soil layers

The percentages of water entering and exiting each soil layer [%] are often pure guesses in PROFILE studies [10-15]. We proposed to link a certain percentage of the entering precipitations lost in the layer to the FAO qualitative drainage class from the ISRIC-Wise worldwide database. The corresponding absorbed water percentages were found by correlating FAO drainage classes to the values in PROFILE studies [10-15]. The studies were mostly destined for “well drained soils” and showed an average value of -8%. Extrapolation of a -2% difference between each class was then assumed.

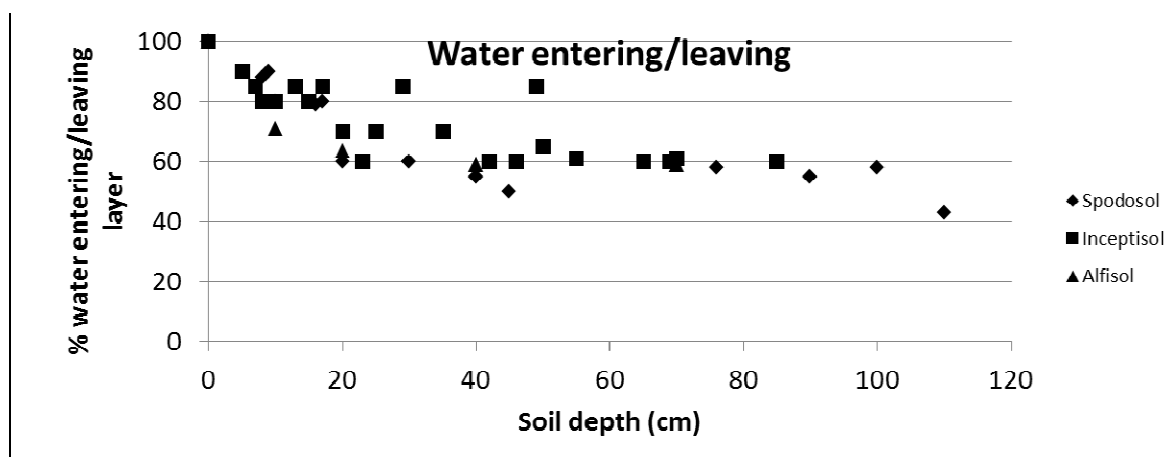


Figure A3-4: Percentage (%) of water entering/exiting a layer according to soil depths from PROFILE studies

Tableau A3.3: FAO drainage class and assumed absorbed water percentage

FAO Drainage Class	Excessively drained	Extremely drained	Well drained	Moderately drained	Imperfectly drained	Poorly drained	Very poorly drained
Absorbed water percentage [%]	-4	-6	-8	-10	-12	-16	-20

Dataset creation: Surface area

The surface area [m^2/m^3] for layer “n” was calculated according to equation (A3.7).

$$\text{Surface area}_n = [(0.3 \times \% \text{ Sand}) \times (2.2 \times \% \text{ Silt}) \times (8 \times \% \text{ Clay})] \times \text{Bulk density} \times 1000 \quad (\text{A3.7})$$

Dataset creation: Runoff

Runoff [m] was calculated with equation (A3.8):

$$\text{Runoff} = \text{Precipitation} \times (\% \text{ Water leaving last layer}) \quad (\text{A3.8})$$

Dataset creation: Net uptake

Net uptake represents the extraction of cations and nitrogen from the soil for use by vegetation. Each vegetation type from Olsen et al [16] was associated to net uptake values from different ecosystems, as surveyed by Duan et al [17]. Tableau A3.4 shows the net uptake values according to vegetation type.

Tableau A3.4: Used net uptake values according to vegetation type (keq/ha/yr)

	Ca	Mg	K	N
Taiga	0.59	0.22	0.09	0.52
Southern Taiga	0.33	0.19	0.11	0.57
Northern or maritime taiga	0.04	0	0.03	0.07
Tropical/subtropical, humid forest, Temperate/boreal forest	0.33	0.19	0.11	0.57
Tropical woods, temperate woods, fields, grass, scrub	0.44	0	0.36	1.82
Mixed forests	0.95	0.11	0.15	0.87
Dry forest and woodland	1.01	0	0.42	2
Temperate broad-leaved forest	1.19	0.07	0.11	0.35
Broad-leaved humid forest	1.49	0.5	0.48	2
Tropical savanna or montane	0.13	0	0.13	0.48
Tropical Savanna and Woodland	0.83	0	0.2	0.74
Irrigated land and surrounding	0.28	0	0.29	1.04
Mangrove/tropical swamp forest	0.28	0	0.29	1.04
Main grassland and shrub land	0.18	0	0.31	1.14
Cold grass or stunted woody complex	0.09	0	0.09	0.29
Non-polar desert or semi-desert	0.16	0	0.10	0.30
Tundra	0.04	0	0.03	0.07
Other crop, settlements, marginal lands, town	0.90	0.19	0.31	1.28
Shore and hinterland complexes	0.17	0	0.41	0.81

Dataset creation: Dissolved organic carbon

Dissolved organic carbon (DOC) [mg/L] was calculated with equation (SI 9) for each soil layer “n”. DOC was estimated from total organic carbon (TOC) values in the ISRIC-Wise worldwide database. Since not all organic carbon (e.g. roots) is soluble, a constant was set to represents the fraction of TOC available for solubilisation. The constant values (CTE) were set using known typical values of DOC for each soil layer from PROFILE studies [10-15]. Dry bulk density (“density”) and water content (“WC”) were also required to obtain DOC values.

$$\text{DOC}_n \left[\frac{\text{mg C}}{\text{dm}^3 \text{ water}} \right] = \text{CTE}_n \left[\frac{\text{m}^3 \text{ water}}{\text{dm}^3 \text{ water}} \right] \times \text{TOC}_n \left[\frac{\text{g C}}{\text{kg soil}} \right] \times \text{Density}_n \left[\frac{\text{kg soil}}{\text{m}^3 \text{ soil}} \right] \times \frac{1}{\text{WC}_n} \left[\frac{\text{m}^3 \text{ soil}}{\text{m}^3 \text{ water}} \right]$$

(SI 9)

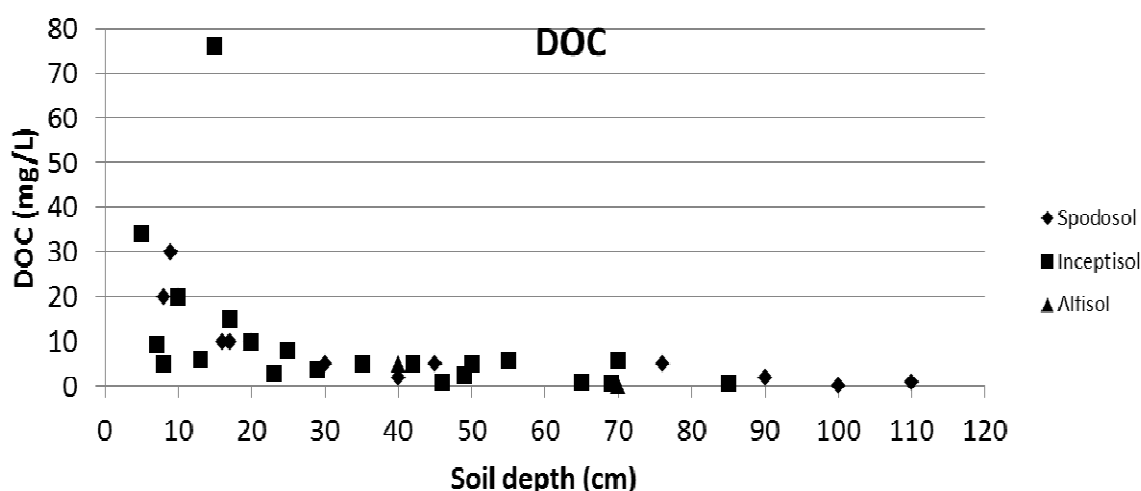


Figure A3-5: DOC values according to soil depths from PROFILE studies

Tableau A3.5: Used DOC constants values

	Soil Layer 1	Soil Layer 2	Soil Layer 3	Soil layer 4	Soil layer 5
DOC constant values [m ³ /dm ³]	0.00006	0.000026	0.00002	0.00001	0.000009

Dataset creation: Mineralogy

Mineralogy [%] was extrapolated from known single-site data to a global soil classification, as defined by the global soil regions world map. Based on this classification, local site sample data were aggregated (arithmetic mean). The result is an average value for each mineral according to the global soil order.

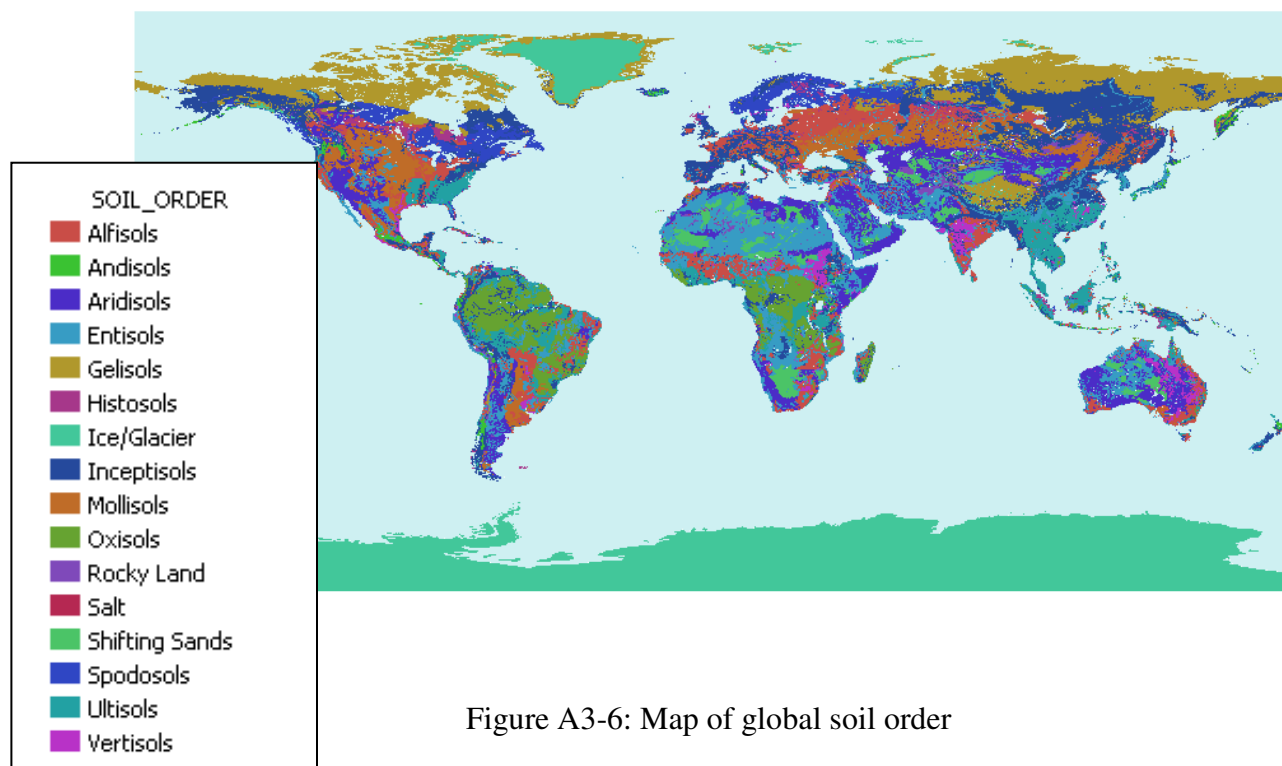


Figure A3-6: Map of global soil order

Tableau A3.6: Input sand-silt mineralogy (%) for the PROFILE model simulations

	Alfisol	Andisols	Aridisols	Entisols	Histosols	Gelisol	Inceptisol	Mollisols	Oxisols	Spodosols	Ultisols	Vertisols
Number of sites	41	29	63	23	5	17	55	40	14	28	61	14
Spatial coverage	Michigan (US) Wisconsin (US) Louisiana (US) Texas (US) Colorado (US) Tennessee (US) Philippines Illinois (US)	Washington State (US)	California (US) Texas (US) Nevada (US) New Mexico (US) Utah (US) Arizona (US) Idaho (US)	Nebraska (US) Texas (US) Nevada (US)	North Carolina (US)	Nunavut (Can)	Alaska (US) Maine (US) Massachusetts (US) Scotland Ireland Czech Republic Germany	Kansas (US)	Brazil South Africa Kenya	PEI (Can) Québec (Can) Nova Scotia (Can) Vermont (US) Michigan (US) Sweden	Virginia (US) North Carolina (US)	Texas (US)
Potassium Feldspar	9.90	0.29	9.48	13.52	16.80	9.56	5.14	21.59	0.15	11.52	3.08	1.93
Muscovite	0.50	0.11	0.45	0.17	1.00	0.50	6.77	2.03	0.00	2.44	8.13	0.00
Calcite	2.28	0.00	0.73	0.22	0.00	26.44	0.09	0.54	0.00	0.26	0.00	0.14
Pyroxene	0.20	0.86	0.74	1.30	0.20	2.25	1.04	0.79	0.08	0.30	1.45	0.00
Chlorite	0.23	0.00	0.02	0.04	0.00	0.00	4.31	0.21	0.00	0.45	0.03	0.21
Garnet	0.15	0.04	0.00	0.09	0.00	0.06	0.11	0.18	0.00	0.02	0.02	0.00
Hornblende	0.35	0.54	0.65	1.13	0.40	0.06	1.46	0.74	0.00	0.91	1.73	0.00
Biotite	0.83	1.39	2.23	0.43	0.00	0.44	4.20	1.08	0.00	2.46	6.18	0.14

Plagioclase Feldspar	10.03	9.36	5.77	15.78	0.40	0.00	10.27	2.08	0.00	3.98	0.67	5.07
Apatite	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.02	0.00	0.00	0.05	0.00	0.00
Epidote	0.05	0.00	0.06	0.13	0.40	0.00	0.00	0.03	0.08	0.18	0.13	0.00
Koalinite	0.03	0.00	0.08	0.00	0.00	0.00	1.73	0.00	0.00	0.00	1.32	0.00
Albite	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	1.98	0.00	0.00	0.00	1.78	0.00
Vermiculite	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.28	0.00
Quartz	64.55	10.32	65.77	46.52	78.20	54.00	44.00	61.64	71.77	54.05	66.78	85.92
Other*	10.9	77.09	14.02	20.67	2.6	6.69	18.88	9.09	27.92	23.38	8.42	6.59

* “Other” treated as quartz by default in the PROFILE model

Plagioclase Feldspar	0	6	0	1	0	0	0	0	0	0	0	0
Apatite	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
Epidote	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
Koalinite	31	16	15	20	30	30	0	24	42	34	45	20
Albite	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
Vermiculite	22	55	1	2	38	15	21	1	13	20	21	2
Quartz	4	16	6	5	11	12	4	10	0	15	1	9
Other*	43	7	55	60	21	42	75	61	45	31	31	65

* “Other” treated as quartz by default in the PROFILE model

Dataset creation: Al_{exp} and anorthite in oligoclases

The model's default values were used. Tableau A3.8 presents the values.

Tableau A3.8: Default parameter values

Parameter	Parameter values
Anorthite in oligoclases [%]	0.8
Al_{exp} [-]	3

Dataset creation: Kgibbs

The values for these parameters were considered to be layer-depth dependant default values. Average values from PROFILE studies [10-15] were used (see Figure A3-7).

Tableau A3.9 presents the values.

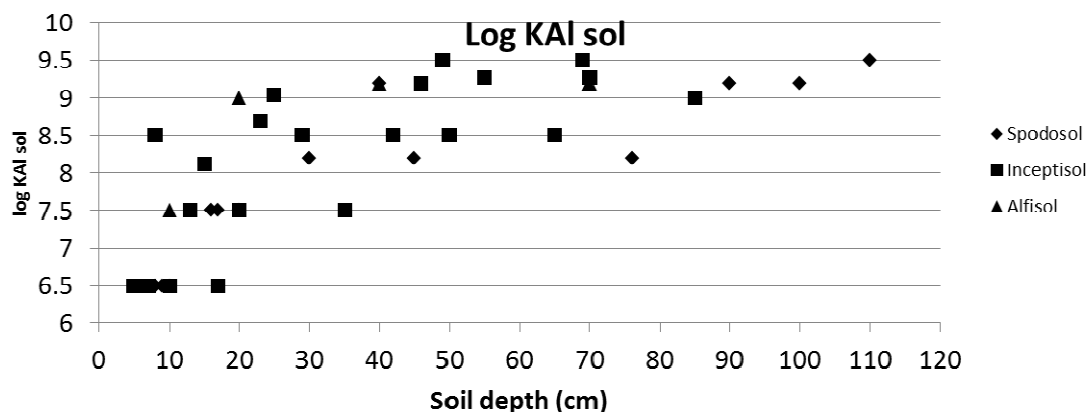


Figure A3-7: Log KAlsol according to soil depths from PROFILE studies

Tableau A3.9: Used log KAlsol values

	Soil layer 1	Soil layer 2	Soil layer 3	Soil layer 4	Soil layer 5
Log KAlsol (log Kgibbs) [-]	7.2	8.3	8.8	9.1	9.3

Dataset creation: BC/N uptake efficiency

The values for these parameters were considered to be layer-depth dependant default values. Average values from PROFILE studies [10-15] were used (see Figure A3-8). Tableau 3.10 presents the values.

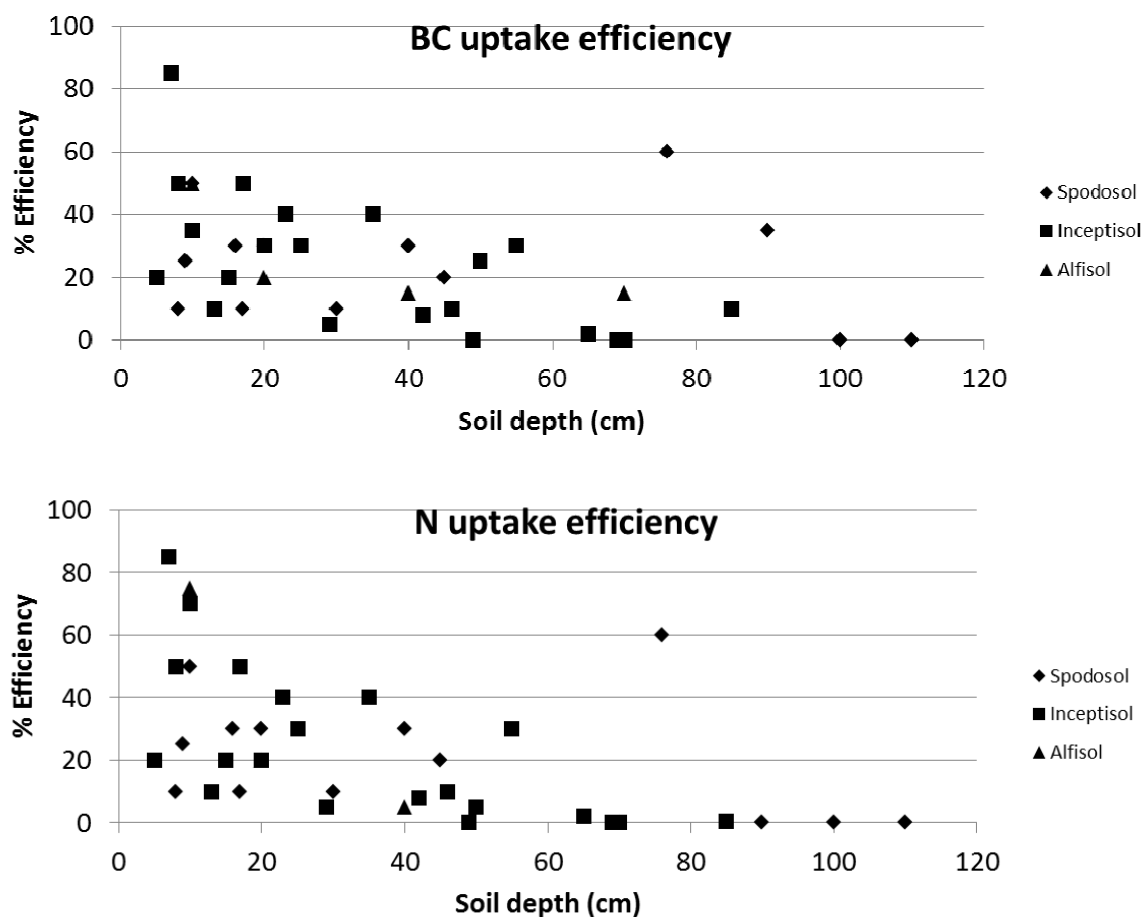


Figure A3-8: BC (up) or N (down) uptake efficiency according to soil depths from PROFILE studies

Tableau A3.10: Used BC/N uptake efficiency values

	Soil layer 1	Soil layer 2	Soil layer 3	Soil layer 4	Soil layer 5
BC/N uptake efficiency [%]	50	30	10	5	2

Dataset creation: CO₂ pressure

The values for these parameters were considered to be layer-depth dependant default values. Average values from PROFILE studies [10-15] were used (see Figure A3-9). Tableau A3.11 presents these values.

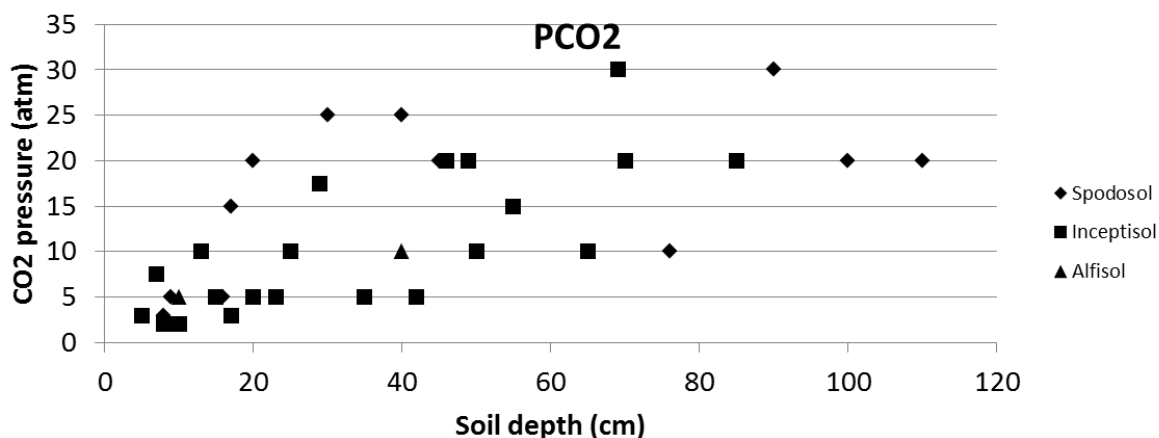


Figure A3-9: CO₂ pressure according to soil depths from PROFILE studies

Tableau A3.11: Used CO₂ pressure values

	Soil layer 1	Soil layer 2	Soil layer 3	Soil layer 4	Soil layer 5
CO ₂ pressure [atm]	5	10	20	20	20

Dataset creation: Denitrification

The approach used in this paper follows the one outlined by Bouwman et al [3]. The deposition of N compounds was corrected for transformations of N to determine the net acidifying effect. A fraction of N is lost by soil denitrification. This fraction is a function of soil texture and soil drainage, as presented in Tableau A3.12.

Tableau A3.12: Denitrification factor as a function of FAO qualitative drainage class and soil texture class

Drainage Class	Soil texture class		
	Coarse	Medium	Fine
Excessively to well drained	0.1	0.3	0.7
Well to moderately well drained	0.2	0.4	0.8
Imperfectly drained	0.3	0.5	0.8
Poorly drained	0.4	0.6	0.8
Very poorly drained	0.6	0.8	0.8

Dataset creation: Litter fall and canopy exchange

Litter fall and canopy exchange may be considered as retardants of atmospheric deposition. We assumed that all atmospheric deposition in a steady-state will ultimately reach ground level, and the computation of litter fall and canopy exchange can be considered double counting. This simplification is in line with the simplifications used in regional PROFILE [11] applications.

Dataset creation: Net mineralization

Being a steady-state model, PROFILE does not model the accumulation or depletion of organic material.

Uncertainty due to parameter variability

The weather characteristics and soil parameters inputs were given 1 000 different random values. Tableaux A3.13 to A3.15 present the distribution from which new values were selected for each of the simulated parameters.

Tableau A3.13: Uniform distribution values for input parameters that DO NOT VARY according to soil depth

Parameter	Description	MINIMUM (relative or absolute value to the best estimate)	MAXIMUM (relative or absolute value to the best estimate)
WEATHER CHARACTERISTICS			
Precipitation [m]	Uniform distribution	90%	110%
Temperature [°C]	Uniform distribution	90%	110%
SOIL PARAMETERS			
Soil water content [m ³ water/m ³ soil]	Uniform distribution	Permanent wilting point	Field capacity
Soil bulk density [kg/m ³]	Uniform distribution	75%	125%
Water entering/leaving layer (%)	Uniform distribution	80%	120%
Surface area [m ² /m ³]	Uniform distribution	70%	130%
Net uptake [keq/ha/yr]	Uniform distribution	0%	100%

Tableau A3.14: Uniform distribution values for input parameters that VARY according to soil depth

	Dissolved organic carbon	Log Kgibb	CO2 pressure	BC uptake efficiency	N uptake efficiency
Description	Uniform distribution				
Layer 1	5 to 34	6.5 to 8.5	2 to 10	10 to 85	10 to 85
Layer 2	3.7 to 8	7.5 to 9	10 to 25	5 to 40	5 to 40
Layer 3	1 to 5	8.2 to 9.5	10 to 25	0 to 30	0 to 30
Layer 4	0 to 5.9	8.2 to 9.5	10 to 30	0 to 60	0 to 60
Layer 5	0 to 2	9 to 9.5	20 to 30	0 to 35	0 to 35

Tableau A3.15: Normal distribution standard deviation for minerals (the mean of the normal distribution is the best estimate)

Minerals	Used standard deviation
Potassium Feldspar	5.73
Muscovite	2.70
Calcite	3.29
Pyroxene	1.56
Chlorite	1.06
Garnet	0.16
Hornblende	1.56
Biotite	3.60
Plagioclase Feldspar	6.61
Apatite	0.01
Epidote	0.23
Koalinite	0.95
Albite	1.22
Vermiculite	0.15

SF results for NO_x - HNO_3 and NH_3 emissions

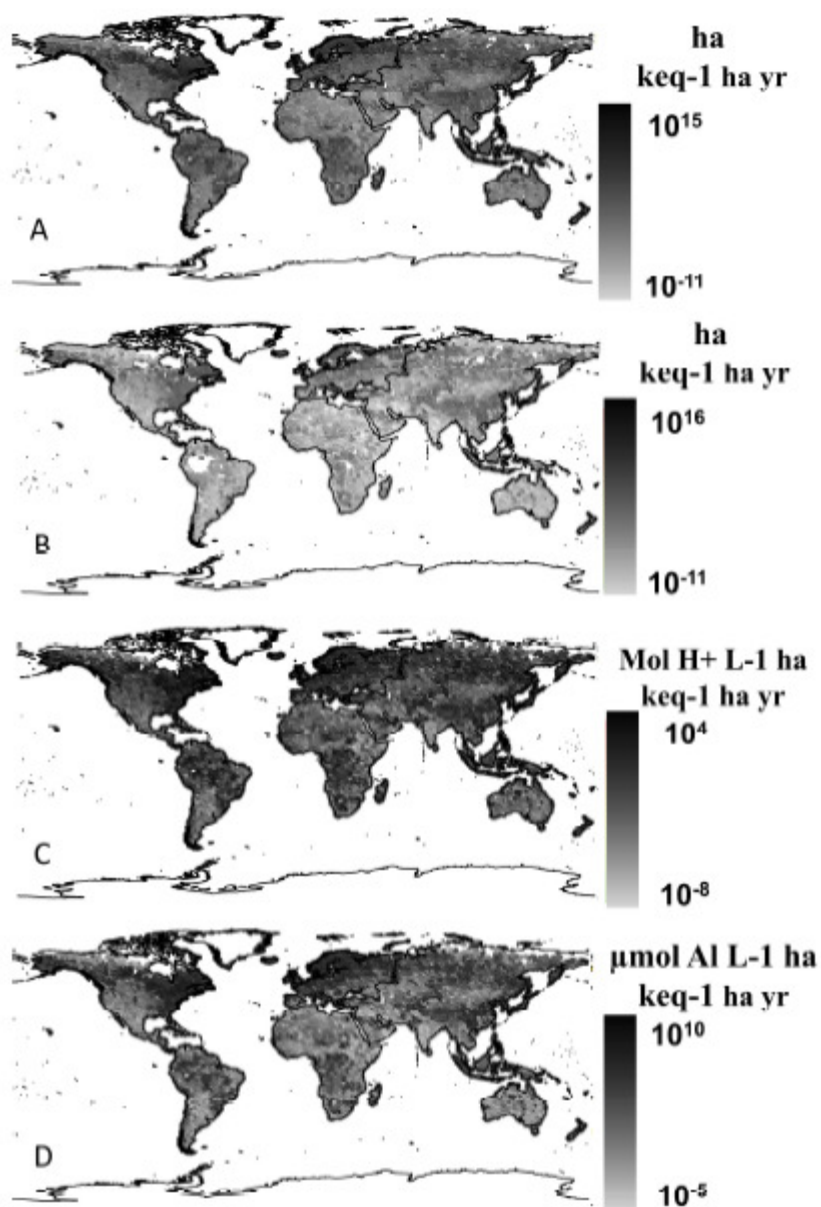


Figure A3-10: Worldwide simulated indicators for a 10% variation in N deposition from NO_x - HNO_3 emissions: (A) BC/Al, (B) Al/Ca, (C) pH and (D) Al

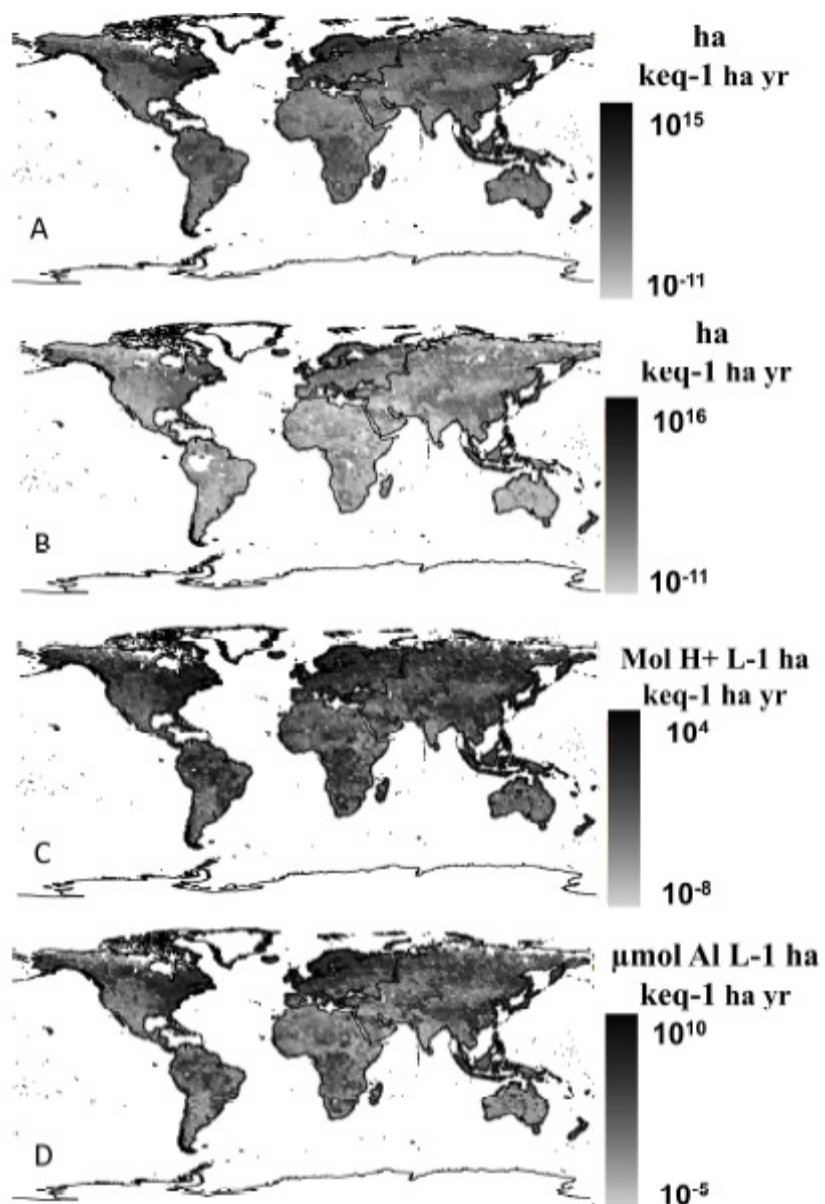


Figure A3-11: Worldwide simulated indicators for a 10% variation in N deposition from NH_3 emissions: (A) BC/Al, (B) Al/Ca, (C) pH and (D) Al

Comparison of PROFILE and Simple Mass Balance (SMB) models

Tableau A3.16 presents a comparison of the PROFILE and Simple Mass Balance (SMB) models on several modelling aspects.

Tableau A3.16: Comparison of PROFILE and SMB models

	PROFILE	Simple Mass Balance (SMB)
Model type	Steady-state	Steady-state
Weathering rates	Modelled with the PROFILE model using soil mineralogy as input	Inputs
Mineralogy	Required*	Not required*
Water transport	Water is assumed to move vertically through several soil layers	No transport; one layer
Cation exchange between Al, H and base cations	Gapon exchange reactions	Gaines-Thomas equations
Exchange between soil matrix and the soil solution	Diffusion limited	Equilibrium equation
Aluminium concentration	Gibbsite	Gibbsite
Organic acids [R-]	Calculated as: $[R-] = \frac{K_{Oliv} \times [DOC] \times \alpha}{(K_{Oliv} + [H+])^{**}}$	Not included
Bicarbonates [HCO ₃ ⁻]	Calculated as: $[HCO_3^-] = \frac{K_{H_2CO_3} \times K_{Henry} \times P_{CO_2}}{([H+])^{***}}$	Not included
Sodium (Na) uptake by plants	Neglected: not a major nutrient	Neglected: not a major nutrient

* SMB does not require mineralogy because it does not calculate weathering rates and takes them as inputs. However, it commonly use the PROFILE mineral sub-model to calculate weathering rates. Global scale evaluation of mineralogy may be an issue especially if minerals were not included in the sub-model. If not included, the minerals are treated as quartz by default. Most soil orders have a limited number of “other minerals” (mostly below 10% for the sand/silt mineralogy; see Tableau A3.6)

** where DOC is dissolved organic carbon in g m⁻³, α a conversion factor ($\alpha = 7 \cdot 10^{-6}$ kmol g⁻¹) and K_{Oliv} a constant dependant of pH

*** where K_1 is a dissociation constant, K_{Henry} is Henry constant and P_{CO_2} is the CO₂ partial pressure

Comparison of the simulated background pH with pH from the ISRIC-Wise database

We compared the simulated indicator values and those from the ISRIC-Wise database (version 1.1). The comparison is limited to the pH indicator, since it is the only available indicator found at a global scale. While not bereft of uncertainties since PROFILE simulates the steady-state soil solution pH and the database only provides a soil paste pH that may be far from steady-state, the comparison could still provide an approximate idea of the accuracy of the simulated indicator values. The comparison of the simulated and ISRIC-Wise worldwide pH values is assessed with relative error. To have a consistent comparative framework, the ISRIC-Wise five layer pH data were aggregated into a single value using the roots distribution fraction.

In the analysis of the results, the spatial variation of the ISRIC-Wise must be considered. The database estimates parameters for 106 FAO soil units but does not explicitly consider the possible effects of regional variations in climate, relief, parent material, land use, and management practices on specific soil parameters [18]. The ISRIC-Wise soil type pH variation was found to be approximately $\pm 25\%$.

Discrepancies in the comparison could be explained by the fact that PROFILE simulated the steady-state soil solution pH and that the database only provided a soil paste pH that may be far from steady-state. However, further research found other sources of discrepancies that would drastically improve these percentages. By modifying the deposition levels with the ones from field measurements from Environment Canada [19], the following correlation was obtained for the 804 receiving environments in Canada's eastern provinces. From the results presented in Figure A3-12, it was found that 97% of the receiving environments solely constituted of the "boreal forest/taiga" and the "temperate broadleaf and mixed forest" biomes were inside the $\pm 25\%$ relative error range. This is a net improvement when compared to the previously obtained results with 62 and 73%, respectively, of the receiving environment in the $\pm 25\%$ relative error range.

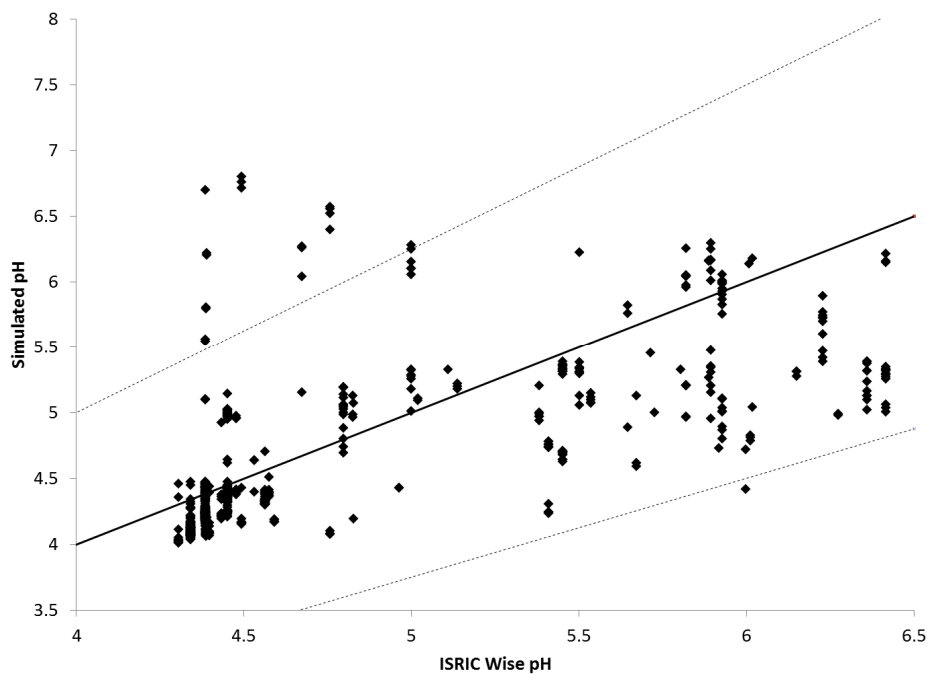


Figure A3-12: Comparison of simulated pH (with deposition measurements instead of global modeling) with the pH from the ISRIC-Wise database

Figure A3-13 shows the relative error between the acidification potential obtained from measurements and simulated deposition values.

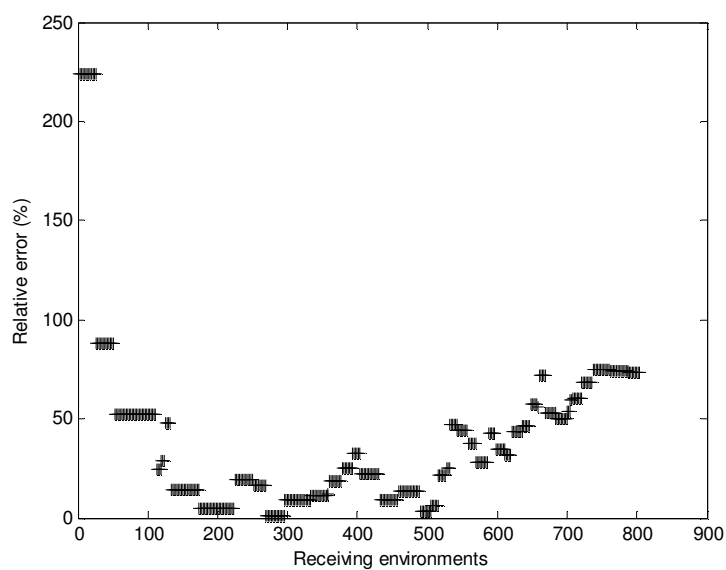


Figure A3-13: Acidification potential relative error between measured and simulated values for the 804 receiving environments in Canada's eastern provinces.

Figures A3-14 shows deposit discrepancies between the global deposition estimates and the measured values for all the considered deposited substances. Most acid deposition values are inside the $\pm 50\%$ error range from a perfect match. The same cannot be said of the base cations, sodium and chloride deposition.

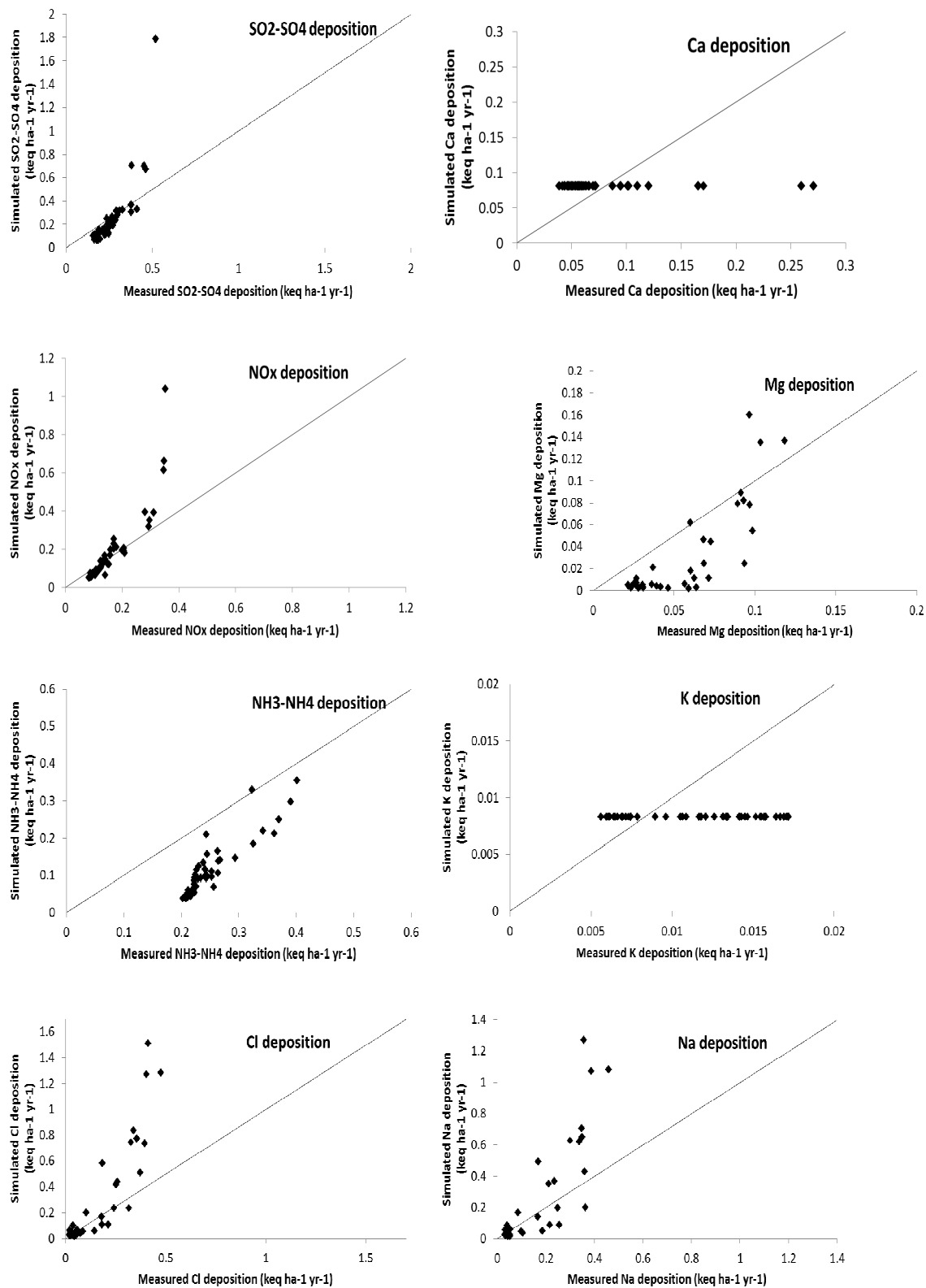


Figure A3-14: Measured and simulated values of deposition

Correlation between sample sites and soil dust or sea-salt depositions

The following graphs presents the obtained correlations between deposition of calcium, magnesium, sodium, chloride and potassium at 231 sampling sites of the National Atmospheric Deposition program database for 2005 [7] with soil dust from Tegen and Fung $4^{\circ} \times 5^{\circ}$ grid resolution model [5] or sea-salt deposition from GEOS-Chem.

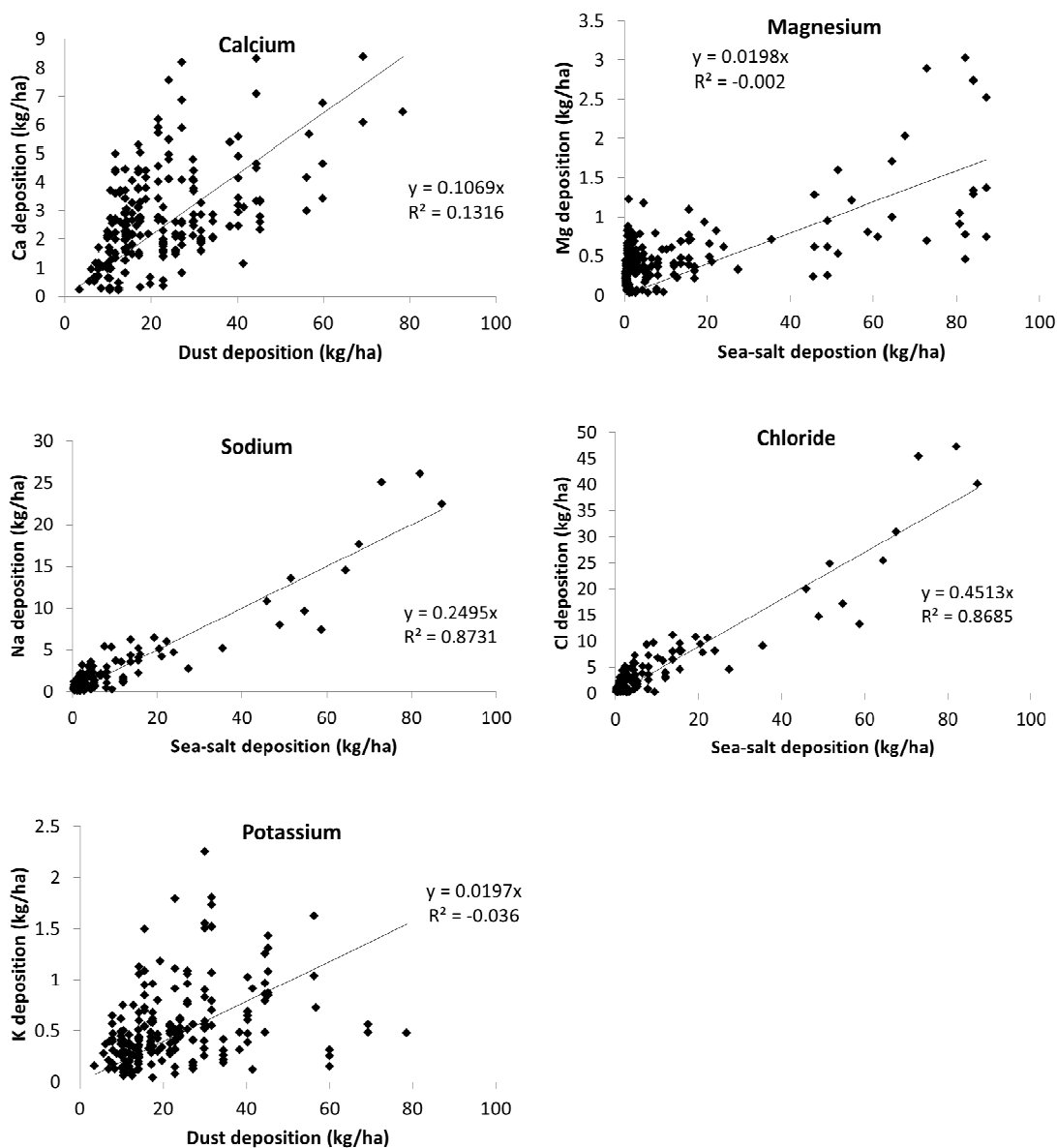


Figure A3-15: Correlation between sample sites and soil dust or sea-salt depositions

pH modifications using 1, 5 and 10% marginal change

Tableau A3.17 presents the relative error to the average pH after a change of 1%, 5% and 10% in emissions of SO₂-SO₄ for 100 randomly chosen receiving environments. Results show that 38% of the selected receiving environments are unaffected by a 1% change in deposition. These ratios drop to 11% and 6% after a 5% and 10% deposition change, respectively.

Tableau A3.17: Relative error between average pH and modified average pH from a change of 1%, 5% and 10% in SO₂-SO₄ deposition

Average pH	Relative pH error	Relative pH error	Relative pH error
	1% change	5% change	10% change
5.07	0.00E+00	2.37E-04	4.73E-04
4.92	1.63E-04	8.95E-04	1.83E-03
7.34	5.45E-05	5.45E-05	1.09E-04
7.21	5.55E-05	1.94E-04	3.61E-04
5.22	7.66E-05	6.13E-04	1.34E-03
5.69	0.00E+00	1.76E-04	3.16E-04
6.18	3.24E-05	9.72E-05	1.62E-04
5.18	3.86E-05	3.48E-04	6.18E-04
6.21	6.44E-05	1.93E-04	4.18E-04
7.53	0.00E+00	5.31E-05	5.31E-05
7.06	5.66E-05	3.12E-04	5.95E-04
8.09	0.00E+00	4.94E-05	4.94E-05
6.65	6.02E-05	3.91E-04	8.73E-04
6.46	6.20E-05	4.96E-04	9.29E-04
8.43	0.00E+00	2.37E-05	4.75E-05
8.04	0.00E+00	2.49E-05	4.97E-05
7.12	2.81E-05	8.43E-05	1.97E-04
6.49	1.54E-04	8.63E-04	1.82E-03
4.96	2.01E-04	8.06E-04	1.57E-03
4.52	8.86E-05	1.77E-04	4.43E-04
5.03	7.95E-05	3.18E-04	6.76E-04
4.77	1.26E-04	4.61E-04	1.01E-03
4.68	1.28E-04	5.98E-04	1.11E-03
4.70	1.70E-04	5.96E-04	1.15E-03
7.49	0.00E+00	2.67E-05	2.67E-05

5.74	6.97E-05	2.79E-04	5.22E-04
5.04	3.97E-05	1.59E-04	2.78E-04
5.05	0.00E+00	3.96E-05	3.96E-05
5.00	8.00E-05	6.00E-04	1.12E-03
5.04	3.97E-05	1.19E-04	1.98E-04
5.05	0.00E+00	3.96E-05	3.96E-05
6.39	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00
7.40	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00
5.03	3.98E-05	3.18E-04	5.97E-04
5.01	7.98E-05	4.79E-04	8.38E-04
4.99	4.01E-05	5.22E-04	1.12E-03
7.29	0.00E+00	0.00E+00	2.75E-05
7.29	0.00E+00	2.74E-05	5.49E-05
4.94	1.21E-04	4.05E-04	7.69E-04
5.75	6.96E-05	2.78E-04	5.57E-04
7.30	0.00E+00	0.00E+00	8.22E-05
8.78	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00
7.56	2.65E-05	2.65E-05	2.65E-05
7.54	0.00E+00	7.96E-05	1.33E-04
8.06	0.00E+00	0.00E+00	2.48E-05
7.20	0.00E+00	0.00E+00	2.78E-05
6.68	0.00E+00	2.99E-05	8.98E-05
6.70	0.00E+00	2.98E-05	2.98E-05
5.01	7.98E-05	4.79E-04	8.78E-04
7.63	0.00E+00	2.62E-05	2.62E-05
7.31	2.74E-05	5.47E-05	5.47E-05
6.25	3.20E-05	2.56E-04	4.48E-04
5.35	3.74E-05	1.87E-04	5.23E-04
6.55	3.05E-05	6.11E-05	1.22E-04
6.63	0.00E+00	3.02E-05	3.02E-05
6.84	2.92E-05	8.77E-05	1.46E-04
6.48	0.00E+00	1.54E-04	3.40E-04
5.79	3.45E-05	1.04E-04	2.42E-04
6.08	3.29E-05	6.58E-05	9.87E-05
6.25	3.20E-05	6.40E-05	9.60E-05
4.65	9.04E-04	4.78E-03	9.34E-03
6.70	2.09E-04	1.19E-03	2.48E-03
7.93	0.00E+00	0.00E+00	2.52E-05

7.45	0.00E+00	2.68E-05	2.68E-05
4.99	1.20E-04	8.01E-04	1.56E-03
6.65	3.01E-05	9.02E-05	1.80E-04
8.55	2.34E-05	7.02E-05	1.17E-04
8.54	0.00E+00	2.34E-05	4.69E-05
7.02	5.70E-05	5.70E-05	1.14E-04
7.02	5.70E-05	5.70E-05	1.14E-04
6.39	9.40E-05	4.70E-04	8.77E-04
8.18	0.00E+00	2.44E-05	2.44E-05
7.72	0.00E+00	7.77E-05	1.04E-04
7.73	0.00E+00	5.18E-05	1.81E-04
8.63	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00
8.96	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00
7.80	0.00E+00	2.56E-05	7.69E-05
8.47	0.00E+00	2.36E-05	2.36E-05
8.24	0.00E+00	7.28E-05	1.21E-04
7.51	7.99E-05	2.13E-04	4.00E-04
7.70	2.60E-05	7.80E-05	2.08E-04
7.67	2.61E-05	7.83E-05	1.83E-04
7.87	2.54E-05	5.09E-05	1.02E-04
7.53	7.96E-05	1.06E-04	1.33E-04
7.87	0.00E+00	2.54E-05	5.08E-05
4.22	1.90E-04	9.96E-04	1.95E-03
4.18	1.91E-04	9.56E-04	1.91E-03
5.83	2.74E-04	1.48E-03	3.02E-03
6.75	2.96E-05	2.96E-04	6.23E-04
5.48	1.83E-03	8.58E-03	1.67E-02
6.70	2.39E-04	1.22E-03	2.54E-03
6.89	0.00E+00	1.45E-04	2.90E-04
6.82	5.87E-05	2.93E-04	5.28E-04
6.95	2.59E-04	1.15E-03	2.36E-03
7.03	5.69E-04	2.82E-03	5.78E-03
7.40	0.00E+00	5.41E-05	1.35E-04
6.52	3.99E-04	1.90E-03	3.68E-03
6.20	6.45E-05	2.58E-04	5.48E-04
5.97	2.35E-04	1.17E-03	2.41E-03
7.34	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00

Comparison of SFs to Bouwman et al. critical load exceedence

The Bouwman et al. method compares measured atmospheric acid deposition (“Acid dep”), calculated as per eq (SI 10), to an atmospheric CL interval. Intervals are given as a function of five different sensitivity classes based on cation exchange capacity (CEC) and base saturation (BS) values (Tableau A3.18). Values of these parameters were obtained from the interpolation/extrapolation database. Nitrogen immobilisation (N_{imm}) was set to 0 and denitrification (f_{den}) was obtained as previously reported.

$$\text{Acid dep} = S_{dep} + (N_{dep} - N_{imm}) \times (1 - f_{den}) - BC_{dep} \quad (\text{A 3.10})$$

Tableau A3.18: Bouwman’s soil classes and critical load values range

Bouwman and colleagues critical load approach			
Sensitivity Class	CEC (meq/100 g⁻¹) at field pH	Base saturation (%)	Critical load value (meq m⁻² yr⁻¹)
1 (most sensitive)	<10	<40	12.5-25
	10-25	<20	
2	<10	40-60	25-50
	10-25	20-40	
	>25	<20	
3	<10	60-80	50-100
	10-25	40-60	
	>25	20-40	
4	10-25	60-80	100-200
	>25	40-60	
5 (least sensitive)	<25	80-100	>200
	>25	>60	

Exceedence of critical loads occurs when S and N deposits are higher than the maximum critical load value; No exceedence occurs when deposits are lower than the minimum critical load value and possible exceedence when deposits are between minimum and maximum critical load values.

Tableau A3.19 defines the used quintiles of the SFs based indicators as calculated by empirical cumulative distribution functions.

To do so, each of the receiving environments SFs were classified, per pollutant, into quintiles (1 the highest SFs; 5 the lowest SFs) based on an empirical cumulative distribution function.

Tableau A3.19: Defined quintiles of SFs based indicators (BC/Al [ha keq-1 ha yr], Al/Ca [ha keq-1 ha yr], pH [mol H⁺ L⁻¹ ha keq-1 ha yr] and Al [μmol Al L⁻¹ ha keq-1 ha yr])

SF based indicators	Quintiles 1	Quintiles 2	Quintiles 3	Quintiles 4	Quintiles 5
N from NO _x -HNO ₃ emissions					
BC/Al	>18.6	18.6-0.1	0.1-0.001	0.001-0.0	<0.0
Al/Ca	>6.7	6.7-0.006	0.006-1.0×10 ⁻⁴	1.0×10 ⁻⁴ -0.0	<0.0
pH	>0.3	0.3-0.01	0.01-7.0×10 ⁻⁴	7.0×10 ⁻⁴ -0.0	<0.0
Al	>3.1×10 ⁴	3.1×10 ⁴ -3.5×10 ¹	3.5×10 ¹ -1.1	1.1-0.0	<0.0
N from NH ₃ emissions					
BC/Al	>27.6	27.6-0.15	0.15-0.0026	0.0026-1.1×10 ⁻⁵	<1.1×10 ⁻⁵
Al/Ca	>9.2	9.2-0.01	0.01-2.0×10 ⁻⁴	2.0×10 ⁻⁴ -1.0×10 ⁻⁶	<1.0×10 ⁻⁶
pH	>0.5	0.5-0.02	0.02-0.001	0.001-2.4×10 ⁻⁵	<2.4×10 ⁻⁵
Al	>7.4×10 ⁴	7.4×10 ⁴ -5.5×10 ¹	5.5×10 ¹ -1.9	1.9-0.02	<0.02
S from SO ₂ -SO ₄ emissions					
BC/Al	>86.4	86.4-0.43	0.43-0.008	0.008-0.0001	<0.0001
Al/Ca	>28.1	28.1-0.02	0.02-5.0×10 ⁻⁴	5.0×10 ⁻⁴ -1.1×10 ⁻⁵	<1.1×10 ⁻⁵
pH	>0.7	0.7-0.05	0.05-0.003	0.003-1.6×10 ⁻⁴	<1.6×10 ⁻⁴
Al	>9.1×10 ⁴	9.1×10 ⁴ -1.5×10 ²	1.5×10 ² -4.8	4.8-0.24	<0.24

Following Tableau 3.20 to A 3.23 cross-reference the SFs quintiles with the Bouwman critical load exceedence. As SFs quintiles may change across pollutants, the receiving environment representative quintiles was the lowest one obtained.

Tableau A3.20: Comparison of BC/Al based SFs quintiles with critical load exceedence conclusions from Bouwman et al.

	Quintiles 1	Quintiles 2	Quintiles 3	Quintiles 4	Quintiles 5
Exceedence	5.9	3.9	2.2	1.4	0.3
Maybe	6.3	5.9	4.3	2.9	0.6
No exceedence	10.6	11.9	17.4	18.6	7.3

Tableau A3.21: Comparison of Al/Ca based SFs quintiles with critical load exceedence conclusions from Bouwman et al.

	Quintiles 1	Quintiles 2	Quintiles 3	Quintiles 4	Quintiles 5
Exceedence	5.3	2.4	1.6	1.3	0.6
Maybe	5.8	4.6	3.5	2.5	1.0
No exceedence	10.5	16.1	18.9	16.7	9.0

Tableau A3.22: Comparison of pH based SFs quintiles with critical load exceedence conclusions from Bouwman et al.

	Quintiles 1	Quintiles 2	Quintiles 3	Quintiles 4	Quintiles 5
Exceedence	5.8	4.0	1.9	1.8	0.3
Maybe	6.5	5.8	3.8	3.2	0.9
No exceedence	12.0	12.8	15.7	16.4	9.0

Tableau A3.23: Comparison of Al based SFs quintiles with critical load exceedence conclusions from Bouwman et al.

	Quintiles 1	Quintiles 2	Quintiles 3	Quintiles 4	Quintiles 5
Exceedence	6.2	3.3	2.2	1.8	0.3
Maybe	6.4	5.4	4.4	3.1	0.8
No exceedence	10.2	12.6	17.3	16.7	9.0

Références pour l'Annexe 3

1. Bey, I.; Jacob, D.; Yantosca, R.; Logan, J.; Field, B.; Fiore, A.; Li, Q.; Liu, H.; Mickley, L.; Schultz, M., Global modeling of tropospheric chemistry with assimilated meteorology: Model description and evaluation. *Journal of Geophysical research* **2001**, *106*, (D19), 23073-23905.
2. NOAA National Climatic Data Center State of the Climate: Global Analysis for Annual 2005. www.ncdc.noaa.gov/sotc/global/2005/13 (June 5th 2011),
3. Bouwman; al, A Global analysis of acidification and eutrophication of terrestrial ecosystems. *Water, Air, & Soil Pollution* **2002**, *141*, 349-382.
4. Kuylenstierna, J.; Rodhe, H.; Cinderby, S.; Hicks, K., Acidification in developing countries: ecosystem sensitivity and the critical load approach on a global scale. *Ambio* **2001**, *30*, (1), 20-28.
5. Tegen; Fung, Modeling of mineral dust in the atmosphere: Sources, transport and optical thickness. *Journal of Geophysical Research* **1994**, *99*, 22897-22914.
6. Alexander, B.; Park, R. J.; Jacob, D. J.; Li, Q. B.; Yantosca, R. M., Sulfate formation in sea-salt aerosols: Constraints from oxygen isotopes. *Journal of Geophysical research* **2005**, *110*, (D10307).
7. National Atmospheric Deposition Program. 2005. [Annual Data for sites in the NADP/NTN Network. Online.Data retrieved October 8th 2010.](http://nadp.sws.uiuc.edu/nadpdata/annualReq.asp?site=Custom156)
<http://nadp.sws.uiuc.edu/nadpdata/annualReq.asp?site=Custom156>
8. Hijmans, R. J.; S.E. Cameron; J.L. Parra; Jones, P. G.; Jarvis, A., Very high resolution interpolated climate surfaces for global land areas. *International journal of Climatology* **2005**, *25*, (15), 1965-1978.
9. Rawls, W. J.; Brakensiek, D. L.; Saxton, K. E., Estimation of soil water properties. *Transactions of the ASAE* **1982**, *25*, (5), 1316-1320 & 1328.
10. Aherne, J.; Sverdrup, H.; Farrell, E. P.; Cummins, T., Application of the SAFE model to a Norway spruce stand at Ballyhooly , Ireland. *Forest Ecology and Management* **1998**, *101*, (1-3), 331-338.
11. Alveteg, M.; Walse, C.; Sverdrup, H., Evaluating simplifications used in regional applications of the SAFE and MAKEDEP models. *Ecological modelling* **1997**, *107*, 265-277.
12. Hodson, M.; Langan, S.; Wilson, M., A sensitivity analysis of the PROFILE model in relation to the calculation of soil weathering rates. *Applied Geochemistry* **1996**, *11*, 835-844.
13. Jönsson, C.; Warfvinge, P.; Sverdrup, H., Uncertainty in predicting weathering rate and environmental stress factors with the PROFILE model. *Water, Air, & Soil Pollution* **1995**, *81*, 1-13.
14. Reynolds, B., Predicting soil acidification trends in Plynlimon using the SAFE model. *Hydrology and Earth System Sciences* **1997**, *1*, (3), 717-728.

15. Warfvinge, P.; Sverdrup, H., Calculating critical loads of acid deposition with PROFILE: a steady-state soil chemistry model. *Water, Air, and Soil pollution* **1992**, (63), 119-143.
16. Olson, D. M.; E. Dinerstein; E.D. Wikramanayake; N.D. Burgess; G.V.N. Powell; E.C. Underwood; J.A. D'amico; I. Itoua; H.E. Strand; J.C. Morrison; C.J. Loucks; T.F. Allnutt; T.H. Ricketts; Y. Kura; J.F. Lamoreux; W.W. Wettengel; P. Hedao; Kassem., K. R., Terrestrial Ecoregions Base Global Dataset In WWF: 2001.
17. Duan. L; Huang. Y; Hao. J; Xie. S; Hou. M, Vegetation uptake of nitrogen and base cations in China and its role in soil acidification. *Science of total environment* **2004**, 330, 187-198.
18. Batjes, N. *ISRIC-Wise derived soil properties on a 5 by 5 arc-minutes global grid (version 1.1)*; Report 2006/02, ISRIC-World Soil Information, Wageningen (with data set): 2006; p 55.
19. Environnement Canada, Wet and dry deposition estimates for Eastern Canada 1994-1998. In Canada, E., Ed. Toronto, 2006.

ANNEXE 4 – Supporting information associé au Chapitre

6

Ecological effect factors biome-specific coefficients

Tableau A4.1 provides the optimum pH and α and β coefficients for effect factor calculation. The values were mainly obtained from Azevedo et al. [17].

Table A4.1 : Effect function coefficients

Terrestrial Biomes	pH optimum	α	β
Tundra	7	4.76 [4.62 to 4.90]	0.47 [0.33 to 0.61]
Boreal forest / Taiga	5.3	4.21 [4.09 to 4.32]	0.69 [0.55 to 0.84]
Temperate conifer forests	4.7	3.33 [3.17 to 3.50]	0.28 [0.11 to 0.44]
Temperate broadleaf and mixed forests	4.7	3.57 [3.53 to 3.61]	0.36 [0.32 to 0.40]
Montane grasslands and shrublands	6	5.92 [-]	0.01 [-]
Temperate grasslands, savannas and shrublands	5.1	4.42 [4.37 to 4.47]	0.26 [0.22 to 0.31]
Mediterranean forests, woodlands and scrub	7.8	6.64 [6.21 to 7.08]	1.18 [0.54 to 1.83]
Desert and xeric shrublands	7.4	6.76 [6.68 to 6.83]	0.36 [0.28 to 0.36]
(Sub)tropical moist broadleaf forest	4.1	3.55 [3.51 to 3.60]	0.18 [0.14 to 0.22]
(Sub)tropical grasslands, savannas and shrublands	4.9	4.55 [4.40 to 4.70]	0.16 [-]
(Sub)tropical coniferous forests*	4.1	3.55	0.18
(Sub)tropical dry broadleaf forests*	7	3.55	0.18
Flooded grasslands and savannas	5.9	5.31 [5.10 to 5.51]	0.33 [0.14 to 0.53]
Mangroves	4.3	3.72 [3.67 to 3.77]	0.25 [0.20 to 0.30]

*Biomes whose coefficients were approximated by other biomes based on similar climate conditions

The standard deviation quantified from a switch from known parameters to the parameters for a completely different “similar climate condition” biome (e.g. boreal

forests parameters were approximated by mixed forests parameters instead) was evaluated at 1.34.

Characterization factors

Figure A4-1 presents the spatially-explicit endpoint CFs for emissions of NO_x , NH_3 and SO_2 . CFs located in sea/ocean areas are related to offshore emissions, mainly from ships depositing on continental areas.

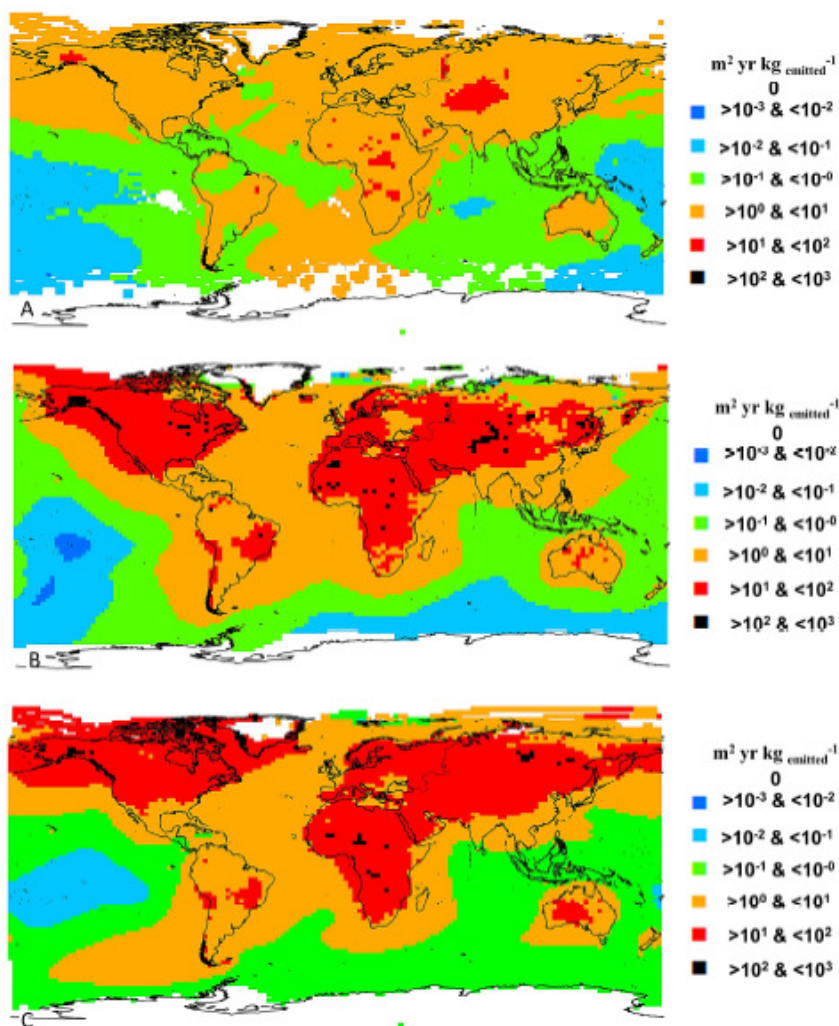


Figure A4-1: Endpoint characterization factors [$\text{m}^2 \times \text{yr} \times \text{kg emitted}^{-1}$] for the assessment of (a) NO_x , (b) NH_3 and (c) SO_2 emissions occurring worldwide at a 2×2.5 resolution.

Tableau A4.2: Global default endpoint oriented characterization factors

Emitted Substance	$\sum FF$ Keq (kg emitted) ⁻¹	$\sum FF \times SF$ mol H+ m2 yr (kg emitted L) ⁻¹	CF [m2 yr (kg emitted) ⁻¹]
NO_x	4.18×10 ⁻⁹	9.17×10 ⁻⁴	2.89
NH₃	1.10×10 ⁻⁸	4.93×10 ⁻³	12.88
SO₂	6.08×10 ⁻⁹	2.52×10 ⁻³	8.32

Tableau A4.3: Continental endpoint oriented characterization factors for NO_x

Continents	$\sum FF$ Keq (kg emitted) ⁻¹	$\sum FF \times SF$ mol H+ m2 yr (kg emitted L) ⁻¹	CF [m2 yr (kg emitted) ⁻¹]
North America	4.18×10 ⁻⁹	1.50×10 ⁻³	3.40
South America	3.20×10 ⁻⁹	7.22×10 ⁻⁴	1.72
Europe	4.87×10 ⁻⁹	1.57×10 ⁻³	5.03
Asia	3.93×10 ⁻⁹	1.45×10 ⁻³	4.79
Africa	3.03×10 ⁻⁹	6.23×10 ⁻⁴	4.22
Australia	3.32×10 ⁻⁹	3.01×10 ⁻⁴	1.54
Oceania	3.93×10 ⁻⁹	3.90×10 ⁻⁴	0.87

Tableau A4.4: Continental endpoint oriented characterization factors for NH₃

Continents	$\sum FF$ [Keq (kg emitted) ⁻¹]	$\sum FF \times SF$ [mol H+ m2 yr (kg emitted L) ⁻¹]	CF [m2 yr (kg emitted) ⁻¹]
North America	1.21×10 ⁻⁸	1.57×10 ⁻²	34.17
South America	1.02×10 ⁻⁸	5.21×10 ⁻³	9.92
Europe	1.32×10 ⁻⁸	8.02×10 ⁻³	20.34
Asia	1.01×10 ⁻⁸	5.37×10 ⁻³	15.76
Africa	9.92×10 ⁻⁹	2.87×10 ⁻³	15.41
Australia	1.08×10 ⁻⁸	8.52×10 ⁻⁴	4.55
Oceania	1.26×10 ⁻⁸	2.03×10 ⁻³	4.60

Tableau A4.5: Continental endpoint oriented characterization factors for SO₂

Continents	$\sum FF$ [Keq (kg emitted) ⁻¹]	$\sum FF \times SF$ [mol H ⁺ m ² yr (kg emitted L) ⁻¹]	CF [m ² yr (kg emitted) ⁻¹]
North America	6.25×10 ⁻⁹	4.32×10 ⁻³	10.72
South America	5.46×10 ⁻⁹	3.46×10 ⁻³	5.30
Europe	7.31×10 ⁻⁹	4.44×10 ⁻³	14.00
Asia	5.94×10 ⁻⁹	3.59×10 ⁻³	11.76
Africa	5.38×10 ⁻⁹	2.40×10 ⁻³	20.91
Australia	5.70×10 ⁻⁹	7.08×10 ⁻⁴	5.11
Oceania	5.56×10 ⁻⁹	1.29×10 ⁻³	2.71

Tableau A4.6: Country endpoint oriented characterization factors for NO_x

Country	ΣFF [Keq (kg emitted) ⁻¹]	$\Sigma FF \times SF$ [mol H+ m2 yr (kg emitted L) ⁻¹]	CF [m2 yr (kg emitted) ⁻¹]		ΣFF [Keq (kg emitted) ⁻¹]	$\Sigma FF \times SF$ [mol H+ m2 yr (kg emitted L) ⁻¹]	CF [m2 yr (kg emitted) ⁻¹]
Afghanistan	3.73E-09	2.21E-03	1.05E+01	Lebanon	3.83E-09	1.17E-03	4.94E+00
Albania	4.25E-09	1.32E-03	4.89E+00	Lesotho	3.50E-09	6.57E-04	2.55E+00
Algeria	3.75E-09	5.80E-04	5.97E+00	Liberia	2.72E-09	3.68E-04	1.23E+00
American Samoa	3.74E-09	1.81E-05	5.81E-02	Libya	3.58E-09	6.49E-04	4.61E+00
Andorra	4.34E-09	1.39E-03	5.91E+00	Liechtenstein	4.80E-09	2.08E-03	4.58E+00
Angola	2.90E-09	7.34E-04	8.39E+00	Lithuania	5.19E-09	1.67E-03	3.91E+00
Anguilla	3.22E-09	1.63E-04	5.95E-01	Luxembourg	4.92E-09	2.08E-03	4.55E+00
Antarctica	4.22E-09	1.51E-04	6.78E-01	Macedonia	4.35E-09	1.69E-03	5.37E+00
Antigua & Barbuda	2.84E-09	1.43E-04	5.23E-01	Madagascar	3.01E-09	5.39E-04	1.83E+00
Argentina	3.51E-09	3.56E-04	9.98E-01	Malawi	2.98E-09	8.35E-04	1.08E+01
Armenia	4.28E-09	1.79E-03	7.87E+00	Malaysia	3.08E-09	3.47E-04	3.35E-01
Aruba	3.22E-09	2.27E-04	1.27E+00	Mali	3.22E-09	4.52E-04	3.56E+00
Australia	3.32E-09	3.51E-04	1.80E+00	Malta	3.81E-09	7.88E-04	3.97E+00
Austria	4.79E-09	2.33E-03	4.90E+00	Martinique	2.54E-09	1.54E-04	6.03E-01
Azerbaijan	4.32E-09	1.66E-03	7.12E+00	Mauritania	3.24E-09	8.25E-04	4.91E+00
Bahamas	3.20E-09	3.84E-04	9.12E-01	Mauritius	3.31E-09	2.08E-04	9.96E-01
Bahrain	3.48E-09	1.67E-03	6.12E+00	Mayotte	2.97E-09	3.62E-04	2.76E+00
Bangladesh	3.45E-09	8.04E-04	3.11E+00	Mexico	3.54E-09	5.15E-04	1.59E+00
Barbados	3.12E-09	1.68E-04	6.47E-01	Moldova	4.72E-09	1.28E-03	3.71E+00
Belarus	5.08E-09	1.51E-03	3.78E+00	Micronesia	3.02E-09	2.53E-05	4.91E-02
Belgium	4.92E-09	1.87E-03	4.17E+00	Mongolia	4.31E-09	1.68E-03	6.69E+00
Belize	3.26E-09	2.55E-04	4.99E-01	Montserrat	2.40E-09	1.35E-04	5.01E-01
Benin	3.16E-09	3.19E-04	2.45E+00	Morocco	3.78E-09	4.41E-04	4.92E+00
Bhutan	3.55E-09	1.21E-03	5.00E+00	Mozambique	3.06E-09	6.23E-04	5.17E+00
Bolivia	3.26E-09	5.78E-04	1.17E+00	Myanmar	3.41E-09	7.18E-04	1.94E+00
Bosnia Herzegovina	4.47E-09	1.79E-03	4.91E+00	Namibia	3.10E-09	9.15E-04	4.01E+00
Botswana	3.03E-09	8.28E-04	4.75E+00	Nepal	3.60E-09	1.15E-03	6.14E+00
Brazil	3.13E-09	7.34E-04	3.10E+00	Netherland	5.02E-09	1.84E-03	4.12E+00
British Indian	2.43E-09	1.00E-04	1.92E-01	Netherlands	3.22E-09	2.27E-04	1.27E+00

Ocean Territory				Antilles			
British Virgin Is	3.22E-09	1.63E-04	5.95E-01	New Caledonia	3.70E-09	4.28E-05	1.23E-01
Brunei	2.74E-09	3.14E-04	4.02E-01	New Zealand	4.02E-09	4.77E-04	9.26E-01
Bulgaria	4.43E-09	1.35E-03	5.14E+00	Nicaragua	3.19E-09	2.45E-04	4.99E-01
Burkina Faso	3.18E-09	3.55E-04	2.72E+00	Niger	3.20E-09	5.72E-04	5.01E+00
Burundi	2.67E-09	5.96E-04	5.68E+00	Nigeria	3.10E-09	4.63E-04	3.69E+00
Cambodia	3.02E-09	4.51E-04	7.13E-01	Niue	3.92E-09	2.21E-05	7.60E-02
Cameroon	2.80E-09	6.13E-04	4.41E+00	North Korea	4.24E-09	1.94E-03	4.46E+00
Canada	4.78E-09	2.15E-03	5.79E+00	Norway	5.24E-09	1.83E-03	4.69E+00
Cape Verde	2.95E-09	1.16E-04	5.79E-01	Oman	3.30E-09	8.27E-04	6.56E+00
Central African Republic	3.06E-09	1.31E-03	1.67E+01	Palau	2.10E-09	1.88E-04	3.07E-01
Chad	3.06E-09	7.99E-04	8.57E+00	Pakistan	3.45E-09	2.37E-03	7.39E+00
Chile	3.56E-09	7.85E-04	1.85E+00	Panama	3.16E-09	2.81E-04	7.41E-01
China	3.98E-09	1.60E-03	3.97E+00	Papua New Guinea	2.62E-09	1.07E-04	1.68E-01
Christmas Is	2.34E-09	1.59E-04	1.93E-01	Paraguay	3.16E-09	3.81E-04	1.20E+00
Colombia	3.08E-09	4.35E-04	2.03E+00	Peru	3.22E-09	8.36E-04	1.13E+00
Congo	2.30E-09	6.60E-04	5.15E+00	Philippines	2.98E-09	3.51E-04	5.22E-01
Congo DRC	2.63E-09	6.84E-04	7.78E+00	Pitcairn island	4.12E-09	3.07E-05	1.08E-01
Comoros	2.82E-09	3.65E-04	3.11E+00	Poland	5.04E-09	2.27E-03	4.93E+00
Cook island	4.00E-09	2.36E-05	8.22E-02	Portugal	4.19E-09	8.81E-04	4.45E+00
Costa Rica	3.34E-09	3.88E-04	6.73E-01	Puerto Rico	3.20E-09	1.68E-04	5.98E-01
Cote d'Ivoire	3.07E-09	2.89E-04	1.62E+00	Qatar	3.48E-09	1.69E-03	6.73E+00
Croatia	4.61E-09	1.88E-03	4.56E+00	Reunion	3.28E-09	2.44E-04	1.14E+00
Cuba	3.20E-09	2.67E-04	6.35E-01	Romania	4.62E-09	1.67E-03	4.44E+00
Cyprus	3.91E-09	1.03E-03	5.18E+00	Russia	5.12E-09	1.63E-03	7.06E+00
Czech Republic	4.95E-09	2.45E-03	5.24E+00	Rwanda	2.28E-09	5.91E-04	5.00E+00
Denmark	5.19E-09	2.01E-03	4.49E+00	Samoa	3.75E-09	1.81E-05	5.82E-02
Djibouti	2.82E-09	5.54E-04	4.78E+00	Sao Tome & Principe	1.90E-09	1.59E-04	7.70E-01
Dominican Republic	3.21E-09	1.82E-04	5.70E-01	Saudi Arabia	3.40E-09	2.10E-03	7.78E+00
Ecuador	3.32E-09	6.17E-04	2.44E+00	Senegal	3.25E-09	4.72E-04	2.37E+00
Egypt	3.59E-09	1.80E-03	5.82E+00	Serbia &	4.51E-09	1.77E-03	4.88E+00

				Montenegro			
El Salvador	3.30E-09	2.88E-04	4.56E-01	Seychelles	3.06E-09	3.78E-04	3.05E+00
Equatorial Guinea	2.31E-09	5.50E-04	2.11E+00	Sierra Leone	2.79E-09	3.93E-04	1.86E+00
Eritrea	2.94E-09	6.54E-04	5.28E+00	Slovakia	4.88E-09	2.22E-03	4.87E+00
Estonia	5.29E-09	1.65E-03	4.36E+00	Slovenia	4.65E-09	2.16E-03	4.89E+00
Ethiopia	3.05E-09	6.18E-04	6.33E+00	Solomon Is	3.11E-09	2.33E-05	7.39E-02
Faroe Is	3.34E-09	8.13E-04	2.70E+00	Somalia	3.13E-09	6.64E-04	4.61E+00
Falkland island	4.02E-09	1.90E-04	7.78E-01	South Africa	3.47E-09	7.46E-04	3.16E+00
Fiji	3.77E-09	2.38E-05	7.60E-02	South Georgia & the South sandwich island	3.71E-09	2.16E-04	1.03E+00
Finland	5.30E-09	1.58E-03	4.49E+00	South Korea	3.95E-09	1.12E-03	2.39E+00
France	4.69E-09	1.67E-03	4.22E+00	Spain	4.26E-09	1.02E-03	5.71E+00
French Guiana	3.01E-09	3.71E-04	5.80E-01	Sri Lanka	3.10E-09	2.69E-04	7.10E-01
French Polynesia	3.88E-09	1.53E-05	5.06E-02	St Helena	2.44E-09	2.02E-04	1.03E+00
French Southern Antarctic Lands	3.61E-09	1.47E-04	6.42E-01	St Lucia	2.54E-09	1.54E-04	6.03E-01
Gabon	2.25E-09	5.28E-04	2.79E+00	St Kitts & Nevis	3.22E-09	1.63E-04	5.95E-01
Gaza Strip	3.74E-09	1.76E-03	4.81E+00	Sudan	3.09E-09	9.46E-04	1.15E+01
Georgia	4.42E-09	1.86E-03	7.65E+00	Suriname	2.97E-09	4.52E-04	6.94E-01
Germany	4.99E-09	2.16E-03	4.63E+00	Svalbard	4.53E-09	6.53E-04	2.85E+00
Ghana	3.14E-09	2.80E-04	1.90E+00	Swaziland	3.44E-09	6.12E-04	3.04E+00
Greece	4.16E-09	1.06E-03	4.91E+00	Sweden	5.24E-09	2.11E-03	5.09E+00
Greenland	3.43E-09	2.76E-04	1.25E+00	Switzerland	4.71E-09	2.09E-03	4.68E+00
Grenada	3.31E-09	2.39E-04	1.03E+00	Syria	3.99E-09	1.12E-03	4.95E+00
Guadeloupe	2.40E-09	1.35E-04	5.01E-01	Tajikistan	4.03E-09	2.82E-03	1.61E+01
Guam	3.03E-09	1.14E-04	2.60E-01	Tanzania	3.00E-09	6.05E-04	6.50E+00
Guatemala	3.24E-09	2.93E-04	4.99E-01	Thailand	3.07E-09	5.21E-04	9.86E-01
Guinea	3.05E-09	3.44E-04	2.13E+00	Gambia	3.26E-09	3.63E-04	2.00E+00
Guinea-Bissau	3.06E-09	3.10E-04	1.83E+00	East Timor	2.73E-09	1.69E-04	4.95E-01
Guyana	3.06E-09	6.12E-04	1.08E+00	Togo	3.15E-09	2.95E-04	2.15E+00
Haiti	3.11E-09	1.89E-04	5.62E-01	Tonga	3.93E-09	2.32E-05	7.79E-02

Honduras	3.27E-09	2.58E-04	4.74E-01	Trinidad Tobago	3.26E-09	3.03E-04	1.34E+00
Hungary	4.77E-09	1.97E-03	4.58E+00	Tunisia	3.74E-09	7.33E-04	4.75E+00
Iceland	4.62E-09	4.76E-04	2.05E+00	Turkey	4.18E-09	1.13E-03	5.27E+00
India	3.49E-09	8.87E-04	3.85E+00	Turkmenistan	4.05E-09	2.14E-03	1.01E+01
Indonesia	2.97E-09	3.41E-04	2.78E-01	Turks & Caicos Is	2.17E-09	2.02E-04	6.52E-01
Iran	3.80E-09	1.28E-03	5.92E+00	Uganda	2.95E-09	8.31E-04	9.09E+00
Iraq	3.86E-09	1.33E-03	5.85E+00	Ukraine	4.89E-09	1.23E-03	3.72E+00
Ireland	4.66E-09	8.90E-04	2.38E+00	United Arab Emirates	3.37E-09	1.29E-03	8.24E+00
Isle of Man	4.81E-09	1.10E-03	2.68E+00	United Kingdom	4.88E-09	1.31E-03	3.05E+00
Israel	3.73E-09	2.39E-03	5.07E+00	USA	4.20E-09	1.52E-03	3.76E+00
Italy	4.49E-09	1.77E-03	4.91E+00	Uruguay	3.54E-09	2.65E-04	8.27E-01
Jamaica	3.19E-09	2.06E-04	5.62E-01	Uzbekistan	4.16E-09	2.48E-03	1.40E+01
Jan Mayen	4.21E-09	4.54E-04	1.55E+00	Vanuatu	3.64E-09	2.46E-05	8.34E-02
Japan	3.98E-09	7.30E-04	1.78E+00	Venezuela	3.14E-09	3.86E-04	1.97E+00
Jersey	4.77E-09	1.28E-03	3.21E+00	Vietnam	3.23E-09	6.19E-04	1.04E+00
Jordan	3.74E-09	1.60E-03	5.13E+00	Virgin Is	3.22E-09	1.63E-04	5.95E-01
Kazakhstan	4.76E-09	1.89E-03	1.05E+01	Wallis & Futuna	3.78E-09	1.95E-05	6.31E-02
Kenya	3.11E-09	6.92E-04	6.40E+00	West Bank	3.76E-09	1.47E-03	5.10E+00
Kiribati	3.56E-09	2.49E-05	7.67E-02	Western Sahara	3.25E-09	3.52E-04	3.92E+00
Kuwait	3.65E-09	1.86E-03	6.30E+00	Yemen	3.10E-09	7.92E-04	5.34E+00
Kyrgyzstan	4.18E-09	3.37E-03	1.96E+01	Zambia	3.02E-09	7.51E-04	9.46E+00
Laos	3.24E-09	6.19E-04	1.12E+00	Zimbabwe	3.08E-09	6.76E-04	4.82E+00
Latvia	5.23E-09	1.61E-03	3.93E+00				

Tableau 4.7: Country endpoint oriented characterization factors for NH₃

Country	ΣFF [Keq (kg emitted) ⁻¹]	$\Sigma FF \times SF$ [mol H+ m2 yr (kg emitted L) ⁻¹]	CF [m2 yr (kg emitted) ⁻¹]		ΣFF [Keq (kg emitted) ⁻¹]	$\Sigma FF \times SF$ [mol H+ m2 yr (kg emitted L) ⁻¹]	CF [m2 yr (kg emitted) ⁻¹]
Afghanistan	1.05E-08	8.09E-03	3.47E+01	Lebanon	1.08E-08	2.73E-03	1.48E+01
Albania	1.21E-08	6.02E-03	1.81E+01	Lesotho	1.09E-08	1.39E-03	4.76E+00
Algeria	1.13E-08	2.34E-03	2.79E+01	Liberia	9.78E-09	5.99E-03	1.12E+01
American Samoa	9.80E-09	1.53E-05	5.41E-02	Libya	1.07E-08	2.30E-03	1.30E+01
Andorra	1.26E-08	7.85E-03	3.15E+01	Liechtenstein	1.36E-08	1.19E-02	2.00E+01
Angola	9.79E-09	2.65E-03	2.90E+01	Lithuania	1.37E-08	6.64E-03	9.18E+00
Anguilla	1.05E-08	1.47E-03	4.30E+00	Luxembourg	1.39E-08	1.42E-02	2.55E+01
Antarctica	1.83E-08	8.48E-05	3.33E-01	Macedonia	1.22E-08	8.27E-03	2.00E+01
Antigua & Barbuda	1.05E-08	1.48E-03	4.33E+00	Madagascar	1.00E-08	2.22E-03	4.30E+00
Argentina	1.16E-08	1.69E-03	4.44E+00	Malawi	9.82E-09	3.22E-03	4.11E+01
Armenia	1.14E-08	7.86E-03	3.87E+01	Malaysia	9.63E-09	8.80E-04	5.71E-01
Aruba	1.00E-08	1.56E-03	6.83E+00	Mali	1.01E-08	3.46E-03	2.97E+01
Australia	1.08E-08	1.09E-03	5.74E+00	Malta	1.15E-08	2.63E-03	1.02E+01
Austria	1.34E-08	1.61E-02	2.39E+01	Martinique	1.03E-08	1.48E-03	4.91E+00
Azerbaijan	1.13E-08	6.43E-03	2.60E+01	Mauritania	1.02E-08	9.13E-03	4.72E+01
Bahamas	1.08E-08	3.42E-03	7.19E+00	Mauritius	1.00E-08	4.80E-04	2.12E+00
Bahrain	1.05E-08	4.71E-03	1.83E+01	Mayotte	9.79E-09	9.62E-04	5.82E+00
Bangladesh	1.04E-08	1.65E-03	4.56E+00	Mexico	1.07E-08	4.28E-03	1.36E+01
Barbados	1.03E-08	1.45E-03	4.63E+00	Moldova	1.29E-08	3.85E-03	7.85E+00
Belarus	1.36E-08	6.00E-03	8.72E+00	Micronesia	9.66E-09	1.10E-04	3.39E-01
Belgium	1.40E-08	1.15E-02	2.06E+01	Mongolia	7.80E-09	4.40E-03	2.22E+01
Belize	1.02E-08	1.96E-03	3.76E+00	Montserrat	1.04E-08	1.47E-03	4.58E+00
Benin	9.89E-09	1.41E-03	8.26E+00	Morocco	1.13E-08	2.01E-03	2.32E+01
Bhutan	1.04E-08	5.78E-03	1.11E+01	Mozambique	9.98E-09	1.85E-03	1.35E+01
Bolivia	9.98E-09	3.10E-03	6.00E+00	Myanmar	1.02E-08	2.15E-03	4.04E+00
Bosnia Herzegovina	1.28E-08	1.06E-02	2.28E+01	Namibia	1.02E-08	4.22E-03	1.09E+01
Botswana	1.02E-08	3.10E-03	1.80E+01	Nepal	1.05E-08	3.45E-03	1.30E+01
Bouvet Island	1.61E-08	1.70E-05	8.33E-02	Netherland	1.42E-08	1.02E-02	1.91E+01
Brazil	1.00E-08	4.21E-03	1.89E+01	Netherlands	1.00E-08	1.56E-03	6.83E+00

				Antilles			
British Indian Ocean Territory	9.69E-09	3.00E-04	7.55E-01	New Caledonia	1.01E-08	1.55E-04	4.04E-01
British Virgin Is	1.05E-08	1.47E-03	4.30E+00	New Zealand	1.28E-08	1.77E-03	3.01E+00
Brunei	9.68E-09	8.12E-04	8.75E-01	Nicaragua	9.99E-09	1.66E-03	2.95E+00
Bulgaria	1.23E-08	4.79E-03	1.74E+01	Niger	1.02E-08	3.25E-03	1.96E+01
Burkina Faso	1.00E-08	1.85E-03	1.11E+01	Nigeria	9.87E-09	1.82E-03	1.11E+01
Burundi	9.66E-09	3.14E-03	2.27E+01	Niue	1.00E-08	1.55E-05	5.31E-02
Cambodia	9.88E-09	1.13E-03	1.27E+00	North Korea	9.71E-09	1.23E-02	2.57E+01
Cameroon	9.77E-09	2.79E-03	1.46E+01	Norway	1.34E-08	1.39E-02	3.40E+01
Canada	1.33E-08	1.61E-02	4.44E+01	Oman	1.03E-08	2.63E-03	1.73E+01
Cape Verde	1.02E-08	1.25E-03	5.60E+00	Palau	9.72E-09	5.68E-04	1.35E+00
Central African Republic							
Chad	9.75E-09	4.94E-03	6.31E+01	Pakistan	1.05E-08	9.12E-03	2.20E+01
	9.94E-09	3.41E-03	2.73E+01	Panama	9.82E-09	2.16E-03	4.16E+00
				Papua New Guinea			
Chile	1.21E-08	6.07E-03	1.23E+01		9.63E-09	5.57E-04	5.89E-01
China	1.00E-08	5.78E-03	1.21E+01	Paraguay	1.04E-08	2.07E-03	6.15E+00
Christmas Is	9.69E-09	4.34E-04	3.54E-01	Peru	9.73E-09	6.49E-03	8.26E+00
Colombia	9.69E-09	3.24E-03	1.81E+01	Philippines	9.72E-09	1.00E-03	1.58E+00
Congo	9.65E-09	4.83E-03	3.53E+01	Pitcairn island	1.04E-08	1.50E-05	3.62E-02
Congo DRC	9.69E-09	2.77E-03	2.72E+01	Poland	1.38E-08	1.45E-02	2.59E+01
Comoros	9.79E-09	1.06E-03	7.16E+00	Portugal	1.23E-08	6.75E-03	3.05E+01
Cook island	1.01E-08	4.81E-06	1.63E-02	Puerto Rico	1.04E-08	1.47E-03	4.21E+00
Costa Rica	9.87E-09	3.79E-03	4.92E+00	Qatar	1.04E-08	5.10E-03	2.78E+01
Cote d'Ivoire	9.82E-09	1.89E-03	7.83E+00	Reunion	1.01E-08	5.58E-04	2.46E+00
Croatia	1.30E-08	1.04E-02	1.79E+01	Romania	1.28E-08	1.02E-02	1.79E+01
Cuba	1.05E-08	2.31E-03	4.96E+00	Russia	1.12E-08	6.40E-03	2.62E+01
Cyprus	1.10E-08	2.36E-03	1.68E+01	Rwanda	9.66E-09	4.50E-03	2.77E+01
Czech Republic	1.37E-08	1.69E-02	3.10E+01	Samoa	9.80E-09	1.57E-05	5.54E-02
				Sao Tome & Principe			
Denmark	1.43E-08	1.26E-02	2.27E+01		9.65E-09	1.20E-03	6.23E+00
Djibouti	9.96E-09	1.80E-03	1.42E+01	Saudi Arabia	1.04E-08	6.33E-03	2.65E+01
Dominican Republic							
	1.04E-08	1.47E-03	3.79E+00	Senegal	1.01E-08	3.26E-03	1.21E+01

Ecuador	9.57E-09	4.45E-03	1.96E+01	Serbia & Montenegro	1.26E-08	8.51E-03	1.77E+01
Egypt	1.03E-08	3.78E-03	1.62E+01	Seychelles	9.73E-09	8.11E-04	4.74E+00
El Salvador	1.00E-08	2.15E-03	2.61E+00	Sierra Leone	9.84E-09	5.35E-03	2.04E+01
Equatorial Guinea	9.69E-09	4.45E-03	9.29E+00	Slovakia	1.34E-08	1.38E-02	2.49E+01
Eritrea	1.01E-08	2.18E-03	1.31E+01	Slovenia	1.31E-08	1.54E-02	2.50E+01
Estonia	1.35E-08	5.70E-03	1.13E+01	Solomon Is	9.66E-09	8.12E-05	2.81E-01
Ethiopia	9.85E-09	1.85E-03	1.84E+01	Somalia	9.79E-09	2.81E-03	1.11E+01
Faroe Is	1.44E-08	1.91E-03	4.73E+00	South Africa	1.08E-08	2.46E-03	8.01E+00
Falkland island	1.50E-08	2.89E-04	1.07E+00	South Georgia & the South sandwich island	1.56E-08	8.53E-05	4.08E-01
Fiji	9.90E-09	4.32E-05	1.47E-01	South Korea	9.77E-09	4.19E-03	7.20E+00
Finland	1.29E-08	6.47E-03	1.61E+01	Spain	1.24E-08	5.71E-03	3.56E+01
France	1.35E-08	9.13E-03	1.62E+01	Sri Lanka	9.74E-09	4.94E-04	1.00E+00
French Guiana	9.82E-09	2.51E-03	3.76E+00	St Helena	9.84E-09	4.00E-04	1.89E+00
French Polynesia	9.79E-09	3.72E-06	1.19E-02	St Lucia	1.03E-08	1.48E-03	4.91E+00
French Southern Antarctic Lands	1.46E-08	6.12E-06	2.85E-02	St Kitts & Nevis	1.05E-08	1.47E-03	4.30E+00
Gabon	9.65E-09	4.35E-03	1.94E+01	Sudan	9.87E-09	3.46E-03	3.54E+01
Gaza Strip	1.06E-08	4.59E-03	1.42E+01	Suriname	9.81E-09	3.34E-03	4.15E+00
Georgia	1.16E-08	1.02E-02	4.07E+01	Svalbard	1.05E-08	3.51E-04	1.25E+00
Germany	1.40E-08	1.25E-02	2.16E+01	Swaziland	1.06E-08	1.30E-03	7.64E+00
Ghana	9.83E-09	1.41E-03	7.08E+00	Sweden	1.37E-08	1.98E-02	4.31E+01
Greece	1.18E-08	3.78E-03	1.76E+01	Switzerland	1.34E-08	1.39E-02	2.06E+01
Greenland	1.36E-08	1.20E-03	1.43E+01	Syria	1.09E-08	2.59E-03	1.26E+01
Grenada	1.01E-08	1.52E-03	5.40E+00	Tajikistan	1.04E-08	8.94E-03	5.43E+01
Guadeloupe	1.04E-08	1.47E-03	4.58E+00	Tanzania	9.70E-09	2.02E-03	1.70E+01
Guam	9.88E-09	5.31E-04	1.51E+00	Thailand	1.00E-08	1.28E-03	1.73E+00
Guatemala	1.01E-08	2.39E-03	3.44E+00	Gambia	1.01E-08	2.31E-03	1.16E+01
Guinea	9.91E-09	2.70E-03	1.68E+01	East Timor	9.68E-09	4.81E-04	8.57E-01
Guinea-Bissau	9.96E-09	2.44E-03	1.29E+01	Togo	9.84E-09	1.31E-03	7.41E+00
Guyana	9.79E-09	4.81E-03	6.68E+00	Tonga	1.00E-08	3.00E-05	1.01E-01

Haiti	1.04E-08	1.54E-03	3.97E+00	Trinidad Tobago	9.98E-09	1.53E-03	5.93E+00
Honduras	1.00E-08	1.75E-03	2.85E+00	Tunisia	1.14E-08	2.30E-03	1.59E+01
Hungary	1.32E-08	9.90E-03	1.80E+01	Turkey	1.14E-08	3.64E-03	1.78E+01
Iceland	1.54E-08	4.53E-03	2.74E+01	Turkmenistan	1.06E-08	7.51E-03	3.51E+01
India	1.03E-08	2.11E-03	7.32E+00	Turks & Caicos Is	1.07E-08	1.86E-03	4.44E+00
Indonesia	9.61E-09	1.24E-03	4.39E-01	Uganda	9.69E-09	4.06E-03	4.10E+01
Iran	1.07E-08	4.12E-03	1.90E+01	Ukraine	1.30E-08	4.36E-03	8.35E+00
Iraq	1.08E-08	3.07E-03	1.42E+01	United Arab Emirates	1.04E-08	5.28E-03	2.83E+01
Ireland	1.45E-08	3.23E-03	6.18E+00	United Kingdom	1.44E-08	6.96E-03	1.14E+01
Isle of Man	1.46E-08	5.20E-03	9.11E+00	US	1.23E-08	1.35E-02	3.39E+01
Israel	1.06E-08	6.23E-03	1.53E+01	Uruguay	1.13E-08	1.08E-03	2.92E+00
Italy	1.29E-08	1.20E-02	2.23E+01	Uzbekistan	1.05E-08	6.86E-03	4.31E+01
Jamaica	1.03E-08	1.67E-03	4.05E+00	Vanuatu	9.82E-09	7.16E-05	2.71E-01
Jan Mayen	1.35E-08	5.28E-04	1.64E+00	Venezuela	9.82E-09	2.84E-03	1.40E+01
Japan	9.86E-09	4.08E-03	7.91E+00	Vietnam	1.00E-08	1.74E-03	1.94E+00
Jersey	1.40E-08	5.61E-03	9.55E+00	Virgin Is	1.05E-08	1.47E-03	4.30E+00
Jordan	1.06E-08	3.84E-03	1.49E+01	Wallis & Futuna	9.78E-09	3.03E-05	1.06E-01
Kazakhstan	1.10E-08	5.88E-03	3.69E+01	West Bank	1.06E-08	3.17E-03	1.54E+01
Kenya	9.70E-09	2.47E-03	1.55E+01	Western Sahara	1.08E-08	2.02E-03	4.94E+01
Kiribati	9.57E-09	8.68E-06	3.31E-02	Yemen	1.01E-08	3.17E-03	1.65E+01
Kuwait	1.06E-08	5.12E-03	2.20E+01	Zambia	9.83E-09	2.30E-03	2.81E+01
Kyrgyzstan	1.02E-08	1.61E-02	9.04E+01	Zimbabwe	1.01E-08	1.66E-03	9.92E+00
Laos	1.00E-08	1.75E-03	2.05E+00				
Latvia	1.37E-08	6.00E-03	8.00E+00				

Tableau 4.8: Country endpoint oriented characterization factors for SO₂

Country	ΣFF [Keq (kg emitted) ⁻¹]	$\Sigma FF \times SF$ [mol H+ m2 yr (kg emitted L) ⁻¹]	CF [m2 yr (kg emitted) ⁻¹]		ΣFF [Keq (kg emitted) ⁻¹]	$\Sigma FF \times SF$ [mol H+ m2 yr (kg emitted L) ⁻¹]	CF [m2 yr (kg emitted) ⁻¹]
Afghanistan	5.94E-09	5.47E-03	3.37E+01	Lebanon	5.97E-09	1.79E-03	1.12E+01
Albania	6.59E-09	3.22E-03	1.28E+01	Lesotho	5.78E-09	1.31E-03	6.31E+00
Algeria	6.10E-09	1.16E-03	2.57E+01	Liberia	5.20E-09	1.83E-03	8.73E+00
American Samoa	5.06E-09	2.07E-05	3.64E-02	Libya	5.79E-09	1.46E-03	2.28E+01
Andorra	6.81E-09	3.64E-03	1.68E+01	Liechtenstein	7.36E-09	5.49E-03	1.12E+01
Angola	5.16E-09	2.88E-03	3.33E+01	Lithuania	7.90E-09	5.32E-03	1.10E+01
Anguilla	5.51E-09	4.32E-04	1.43E+00	Luxembourg	7.59E-09	6.13E-03	1.22E+01
Antarctica	9.47E-09	6.41E-05	3.78E-01	Macedonia	6.68E-09	4.56E-03	1.40E+01
Antigua & Barbuda	5.54E-09	4.48E-04	1.51E+00	Madagascar	5.29E-09	1.54E-03	6.12E+00
Argentina	5.78E-09	2.50E-03	3.66E+00	Malawi	5.21E-09	3.39E-03	3.99E+01
Armenia	6.60E-09	4.70E-03	2.44E+01	Malaysia	5.13E-09	1.04E-03	3.68E-01
Aruba	5.23E-09	4.30E-04	1.86E+00	Mali	5.31E-09	1.67E-03	1.65E+01
Australia	5.70E-09	7.08E-04	5.11E+00	Malta	6.25E-09	1.72E-03	1.00E+01
Austria	7.29E-09	6.41E-03	1.24E+01	Martinique	5.38E-09	4.62E-04	1.57E+00
Azerbaijan	6.60E-09	3.76E-03	1.89E+01	Mauritania	5.32E-09	2.84E-03	1.53E+01
Bahamas	5.74E-09	1.00E-03	2.67E+00	Mauritius	5.27E-09	3.14E-04	1.86E+00
Bahrain	5.54E-09	2.97E-03	1.39E+01	Mayotte	5.14E-09	8.44E-04	6.34E+00
Bangladesh	5.51E-09	1.48E-03	4.26E+00	Mexico	5.51E-09	1.86E-03	3.24E+00
Barbados	5.40E-09	4.59E-04	1.49E+00	Moldova	7.16E-09	2.98E-03	8.15E+00
Belarus	7.76E-09	5.14E-03	1.15E+01	Micronesia	5.03E-09	1.28E-04	2.89E-01
Belgium	7.67E-09	5.06E-03	1.02E+01	Mongolia	5.67E-09	4.52E-03	2.42E+01
Belize	5.39E-09	8.20E-04	1.34E+00	Montserrat	5.46E-09	4.54E-04	1.49E+00
Benin	5.27E-09	1.68E-03	1.56E+01	Morocco	6.01E-09	8.54E-04	1.21E+01
Bhutan	5.59E-09	3.38E-03	9.71E+00	Mozambique	5.46E-09	2.45E-03	1.41E+01
Bolivia	5.38E-09	5.25E-03	7.35E+00	Myanmar	5.56E-09	2.06E-03	4.78E+00
Bosnia Herzegovina	6.91E-09	4.88E-03	1.30E+01	Namibia	5.40E-09	1.41E-03	1.18E+01
Botswana	5.50E-09	2.80E-03	2.03E+01	Nepal	5.56E-09	2.16E-03	9.57E+00
Bouvet Island	8.51E-09	6.66E-05	3.51E-01	Netherland	7.82E-09	5.00E-03	1.04E+01
Brazil	5.28E-09	3.18E-03	9.38E+00	Netherlands	5.23E-09	4.30E-04	1.86E+00

				Antilles			
British Indian Ocean Territory	5.12E-09	1.81E-04	5.49E-01	New Caledonia	5.28E-09	2.41E-04	2.52E-01
British Virgin Is	5.51E-09	4.32E-04	1.43E+00	New Zealand	5.98E-09	2.16E-03	4.67E+00
Brunei	5.15E-09	7.09E-04	4.69E-01	Nicaragua	5.20E-09	9.11E-04	8.84E-01
Bulgaria	6.71E-09	2.75E-03	1.46E+01	Niger	5.40E-09	5.04E-03	4.99E+01
Burkina Faso	5.34E-09	1.80E-03	1.97E+01	Nigeria	5.19E-09	2.05E-03	1.43E+01
Burundi	5.13E-09	3.36E-03	3.13E+01	Niue	5.19E-09	1.76E-05	2.95E-02
Cambodia	5.32E-09	1.01E-03	1.19E+00	North Korea	5.95E-09	4.18E-03	9.15E+00
Cameroon	5.17E-09	2.74E-03	1.60E+01	Norway	7.96E-09	5.75E-03	1.62E+01
Canada	7.05E-09	7.99E-03	2.34E+01	Oman	5.44E-09	1.70E-03	1.75E+01
Cape Verde	5.31E-09	5.54E-04	3.18E+00	Palau	5.16E-09	3.51E-04	5.86E-01
Central African Republic	5.20E-09	4.72E-03	5.58E+01	Pakistan	5.72E-09	6.27E-03	1.86E+01
Chad	5.28E-09	3.59E-03	3.96E+01	Panama	5.15E-09	1.39E-03	1.31E+00
Chile	5.74E-09	3.57E-03	4.40E+00	Papua New Guinea	5.05E-09	5.52E-04	4.36E-01
China	5.81E-09	3.91E-03	8.87E+00	Paraguay	5.50E-09	2.48E-03	5.05E+00
Christmas Is	5.13E-09	4.14E-04	2.17E-01	Peru	5.21E-09	6.92E-03	4.23E+00
Colombia	5.11E-09	1.21E-03	1.93E+00	Philippines	5.27E-09	8.40E-04	1.11E+00
Congo	5.11E-09	4.10E-03	4.31E+01	Pitcairn island	5.54E-09	4.86E-05	7.87E-02
Congo DRC	5.16E-09	4.80E-03	6.17E+01	Poland	7.66E-09	6.55E-03	1.32E+01
Comoros	5.14E-09	9.82E-04	8.30E+00	Portugal	6.53E-09	2.23E-03	1.09E+01
Cook island	5.33E-09	8.68E-06	1.36E-02	Puerto Rico	5.48E-09	4.08E-04	1.27E+00
Costa Rica	5.15E-09	1.86E-03	1.58E+00	Qatar	5.54E-09	3.14E-03	1.65E+01
Cote d'Ivoire	5.24E-09	1.53E-03	1.21E+01	Reunion	5.34E-09	6.98E-04	5.37E+00
Croatia	7.08E-09	4.41E-03	1.01E+01	Romania	7.05E-09	4.62E-03	1.08E+01
Cuba	5.58E-09	7.91E-04	1.88E+00	Russia	7.72E-09	5.80E-03	2.74E+01
Cyprus	6.08E-09	1.43E-03	1.21E+01	Rwanda	5.13E-09	4.07E-03	3.35E+01
Czech Republic	7.53E-09	6.99E-03	1.44E+01	Samoa	5.06E-09	2.12E-05	3.73E-02
Denmark	8.07E-09	6.16E-03	1.30E+01	Sao Tome & Principe	5.14E-09	1.75E-03	1.24E+01
Djibouti	5.24E-09	1.27E-03	1.09E+01	Saudi Arabia	5.54E-09	6.89E-03	2.02E+01
Dominican Republic	5.45E-09	3.94E-04	1.06E+00	Senegal	5.25E-09	1.95E-03	1.05E+01

Ecuador	5.07E-09	2.28E-03	5.64E+00	Serbia & Montenegro	6.90E-09	4.68E-03	1.21E+01
Egypt	5.72E-09	5.18E-03	1.52E+01	Seychelles	5.11E-09	7.54E-04	5.49E+00
El Salvador	5.27E-09	9.42E-04	9.92E-01	Sierra Leone	5.22E-09	1.81E-03	9.92E+00
Equatorial Guinea	5.15E-09	2.52E-03	1.28E+01	Slovakia	7.44E-09	6.26E-03	1.27E+01
Eritrea	5.31E-09	1.51E-03	1.28E+01	Slovenia	7.14E-09	5.71E-03	1.19E+01
Estonia	8.06E-09	6.36E-03	1.64E+01	Solomon Is	5.05E-09	1.69E-04	2.30E-01
Ethiopia	5.22E-09	1.68E-03	1.73E+01	Somalia	5.19E-09	1.24E-03	8.13E+00
Faroe Is	8.02E-09	2.13E-03	8.03E+00	South Africa	5.72E-09	1.60E-03	8.26E+00
Falkland island	7.78E-09	2.36E-03	2.04E+01	South Georgia & the South sandwich island	8.37E-09	6.14E-05	3.73E-01
Fiji	5.09E-09	4.67E-05	8.76E-02	South Korea	5.84E-09	2.29E-03	4.19E+00
Finland	7.94E-09	9.09E-03	2.34E+01	Spain	6.71E-09	2.76E-03	1.43E+01
France	7.34E-09	4.30E-03	9.63E+00	Sri Lanka	5.16E-09	3.55E-04	6.00E-01
French Guiana	5.19E-09	1.44E-03	1.36E+00	St Helena	5.14E-09	2.29E-04	1.26E+00
French Polynesia	5.17E-09	6.29E-06	1.01E-02	St Lucia	5.38E-09	4.62E-04	1.57E+00
French Southern Antarctic Lands	7.59E-09	8.51E-05	3.51E-01	St Kitts & Nevis	5.51E-09	4.32E-04	1.43E+00
Gabon	5.12E-09	2.99E-03	2.02E+01	Sudan	5.23E-09	3.49E-03	3.71E+01
Gaza Strip	5.82E-09	3.35E-03	1.24E+01	Suriname	5.20E-09	1.52E-03	1.56E+00
Georgia	6.78E-09	5.14E-03	2.28E+01	Svalbard	7.22E-09	3.77E-04	1.48E+00
Germany	7.68E-09	6.12E-03	1.22E+01	Swaziland	5.64E-09	1.40E-03	8.51E+00
Ghana	5.25E-09	1.56E-03	1.36E+01	Sweden	7.98E-09	7.73E-03	1.85E+01
Greece	6.42E-09	1.97E-03	1.29E+01	Switzerland	7.26E-09	5.56E-03	1.13E+01
Greenland	7.66E-09	2.95E-03	3.80E+01	Syria	6.14E-09	1.87E-03	1.07E+01
Grenada	5.31E-09	5.02E-04	1.71E+00	Tajikistan	6.20E-09	6.13E-03	3.68E+01
Guadeloupe	5.46E-09	4.54E-04	1.49E+00	Tanzania	5.14E-09	2.61E-03	2.67E+01
Guam	5.19E-09	2.77E-04	7.10E-01	Thailand	5.39E-09	1.13E-03	1.66E+00
Guatemala	5.28E-09	1.04E-03	1.39E+00	Gambia	5.23E-09	1.75E-03	8.98E+00
Guinea	5.24E-09	1.33E-03	1.08E+01	East Timor	5.10E-09	4.50E-04	8.78E-01
Guinea-Bissau	5.20E-09	9.14E-04	6.03E+00	Togo	5.26E-09	1.60E-03	1.46E+01
Guyana	5.20E-09	2.07E-03	2.35E+00	Tonga	5.17E-09	3.01E-05	5.55E-02

Haiti	5.47E-09	4.61E-04	1.18E+00	Trinidad Tobago	5.25E-09	5.91E-04	2.00E+00
Honduras	5.28E-09	8.30E-04	9.74E-01	Tunisia	6.21E-09	1.41E-03	1.68E+01
Hungary	7.22E-09	4.62E-03	1.01E+01	Turkey	6.40E-09	2.20E-03	1.27E+01
Iceland	7.81E-09	2.77E-03	1.63E+01	Turkmenistan	6.32E-09	4.84E-03	3.30E+01
India	5.50E-09	1.66E-03	6.48E+00	Turks & Caicos Is	5.65E-09	5.59E-04	1.59E+00
Indonesia	5.06E-09	1.14E-03	3.65E-01	Uganda	5.15E-09	3.97E-03	3.97E+01
Iran	5.99E-09	2.71E-03	1.45E+01	Ukraine	7.36E-09	2.98E-03	8.75E+00
Iraq	6.09E-09	2.58E-03	1.26E+01	United Arab Emirates	5.47E-09	2.81E-03	2.77E+01
Ireland	7.79E-09	3.08E-03	6.97E+00	United Kingdom	7.86E-09	3.93E-03	7.23E+00
Isle of Man	7.93E-09	3.51E-03	6.85E+00	US	6.45E-09	4.82E-03	1.20E+01
Israel	5.82E-09	4.74E-03	1.38E+01	Uruguay	5.98E-09	9.96E-04	2.32E+00
Italy	6.50E-09	3.15E-03	1.26E+01	Uzbekistan	6.29E-09	6.14E-03	4.10E+01
Jamaica	5.42E-09	4.95E-04	1.14E+00	Vanuatu	4.96E-09	8.27E-05	1.68E-01
Jan Mayen	7.79E-09	8.01E-04	4.12E+00	Venezuela	5.22E-09	8.10E-04	4.40E+00
Japan	5.75E-09	2.06E-03	4.59E+00	Vietnam	5.45E-09	1.64E-03	2.15E+00
Jersey	7.59E-09	3.24E-03	6.22E+00	Virgin Is	5.51E-09	4.32E-04	1.43E+00
Jordan	5.83E-09	4.01E-03	1.45E+01	Wallis & Futuna	5.01E-09	3.48E-05	6.49E-02
Kazakhstan	7.05E-09	4.29E-03	2.79E+01	West Bank	5.84E-09	2.93E-03	1.36E+01
Kenya	5.13E-09	2.32E-03	1.77E+01	Western Sahara	5.58E-09	1.01E-03	1.30E+01
Kiribati	4.96E-09	2.89E-05	7.34E-02	Yemen	5.29E-09	1.85E-03	1.36E+01
Kuwait	5.75E-09	4.35E-03	1.14E+01	Zambia	5.22E-09	5.30E-03	8.54E+01
Kyrgyzstan	6.29E-09	7.15E-03	4.21E+01	Zimbabwe	5.40E-09	2.64E-03	1.86E+01
Laos	5.44E-09	1.37E-03	2.08E+00				
Latvia	7.97E-09	5.33E-03	1.17E+01				

Importance of transboundary emissions

Figure A4-2 presents the percentage of the potential impact occurring on other continents per emission location. The darker the grid, the more important the impact percentage occurring on other continents. Europe and northern Africa are especially prone to transcontinental impacts.

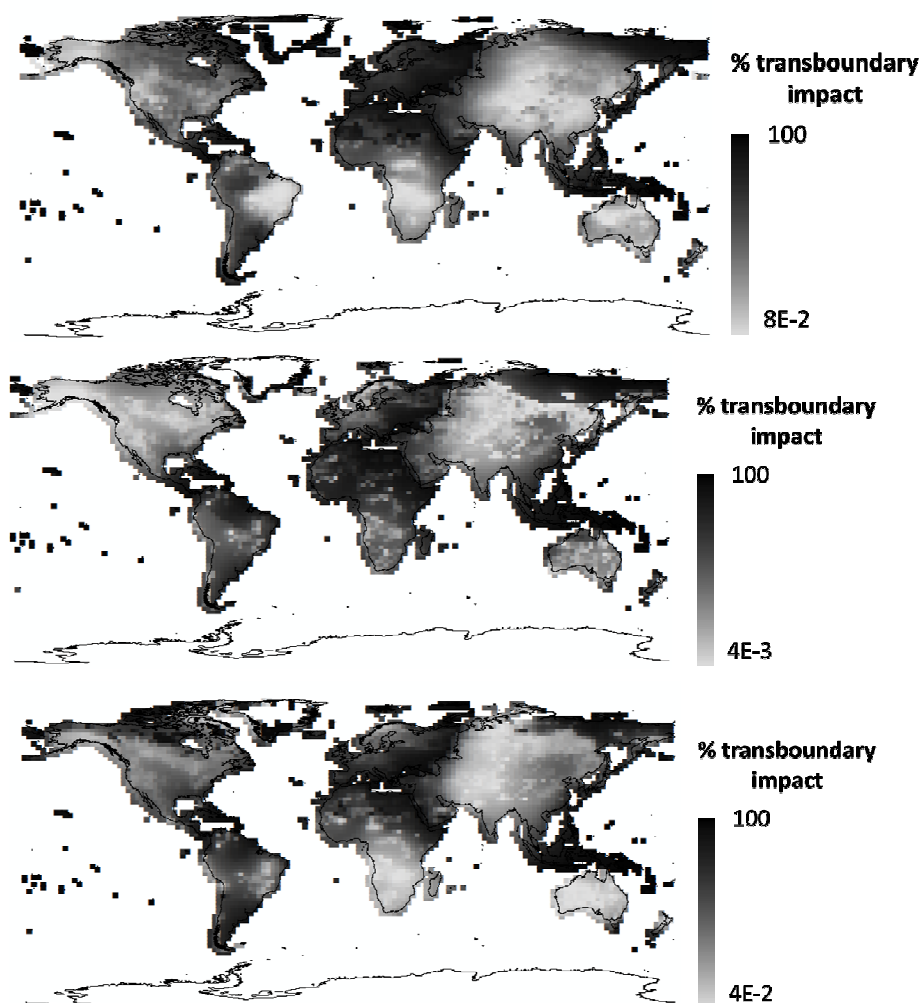


Figure A4-2: Percentage of transcontinental potential impacts of (a) NO_x , (b) NH_3 and (c) SO_2 continental emissions

Références pour l'Annexe 4

1. Roy, P.-O.; Deschênes, L.; Margni, M., Life Cycle Impact Assessment of Terrestrial Acidification: Modeling Spatially Explicit Soil Sensitivity at the Global Scale. *Environmental science & technology* **2012**, 46, (15), 8270–8278.
2. Hijmans, R. J.; S.E. Cameron; J.L. Parra; Jones, P. G.; Jarvis, A., Very high resolution interpolated climate surfaces for global land areas. *International journal of Climatology* **2005**, 25, (15), 1965-1978.
3. Bey, I.; Jacob, D.; Yantosca, R.; Logan, J.; Field, B.; Fiore, A.; Li, Q.; Liu, H.; Mickley, L.; Schultz, M., Global modeling of tropospheric chemistry with assimilated meteorology: Model description and evaluation. *Journal of Geophysical research* **2001**, 106, (D19), 23073-23905.
4. Batjes, N. *ISRIC-Wise derived soil properties on a 5 by 5 arc-minutes global grid (version 1.1)*; Report 2006/02, ISRIC-World Soil Information, Wageningen (with data set): 2006; p 55.
5. Rawls, W. J.; Brakensiek, D. L.; Saxton, K. E., Estimation of soil water properties. *Transactions of the ASAE* **1982**, 25, (5), 1316-1320 & 1328.
6. Aherne, J.; Sverdrup, H.; Farrell, E. P.; Cummins, T., Application of the SAFE model to a Norway spruce stand at Ballyhooly , Ireland. *Forest Ecology and Management* **1998**, 101, (1-3), 331-338.
7. Alveteg, M.; Walse, C.; Sverdrup, H., Evaluating simplifications used in regional applications of the SAFE and MAKEDEP models. *Ecological modelling* **1997**, 107, 265-277.
8. Hodson, M.; Langan, S.; Wilson, M., A sensitivity analysis of the PROFILE model in relation to the calculation of soil weathering rates. *Applied Geochemistry* **1996**, 11, 835-844.
9. Jönsson, C.; Warfvinge, P.; Sverdrup, H., Uncertainty in predicting weathering rate and environmental stress factors with the PROFILE model. *Water, Air, & Soil Pollution* **1995**, 81, 1-13.
10. Reynolds, B., Predicting soil acidification trends in Plynlimon using the SAFE model. *Hydrology and Earth System Sciences* **1997**, 1, (3), 717-728.
11. Warfvinge, P.; Sverdrup, H., Calculating critical loads of acid deposition with PROFILE: a steady-state soil chemistry model. *Water, Air, and Soil pollution* **1992**, (63), 119-143.
12. Duan. L; Huang. Y; Hao. J; Xie. S; Hou. M, Vegetation uptake of nitrogen and base cations in China and its role in soil acidification. *Science of total environment* **2004**, 330, 187-198.
13. Olson, D. M.; E. Dinerstein; E.D. Wikramanayake; N.D. Burgess; G.V.N. Powell; E.C. Underwood; J.A. D'amico; I. Itoua; H.E. Strand; J.C. Morrison; C.J. Loucks; T.F. Allnutt; T.H. Ricketts; Y. Kura; J.F. Lamoreux; W.W. Wetzel; P. Hedao; Kassem., K. R., Terrestrial Ecoregions Base Global Dataset In WWF: 2001.

14. Natural Resources Conservation Service, Soil Survey Laboratory Soil Characterization Data Query Interface. In United States Department of Agriculture: 2009.
15. Reich, P.; Eswaran, H., Global Soil Regions Map. In Natural Resources Conservation Service: 2005.
16. Bouwman; al, A Global analysis of acidification and eutrophication of terrestrial ecosystems. *Water, Air, & Soil Pollution* **2002**, *141*, 349-382.
17. Azevedo, L. A.; Van Zelm, R.; Hendriks, A. J.; Bobbink, R.; Huijbregts, M. A. J., Global assessment of the effects of terrestrial acidification on plant species richness. *Submitted* **2012**.

ANNEXE 5 – Electronic supplement associé au manuscrit

4 (Chapitre 7)

Input parameters for the evaluation of the aquatic environment pH

Table A5.1 provides a list of input parameters, parameters provenance and input parameters spatial resolution for the evaluation of aquatic environment pH.

Table A5.1: Input parameter for the model evaluating the aquatic environment pH

Parameter		Description	Reference
Atmospheric deposits H+ concentration [mol H ⁺ L ⁻¹]	C _{a,g}	Calculated from the individual deposition values SO ₂ -SO ₄ NO _x ⁻ HNO ₃ , NH ₃ , Cl ⁻ , Ca ²⁺ , Mg ²⁺ , K ⁺ and Na ⁺	See SI 1
Precipitation [L/yr]	P _{a,g}	From the WorldClim database	[1]
lake areas [dm ²]	LA _g	Calculated from GWLD 1 and 2 databases	[2]
soil solution H ⁺ concentration travelling to surface waters [mol H ⁺ L ⁻¹]	C _{t,g}	From the PROFILE model	[3]
Runoff [dm/yr]	R _{t,g}	From the PROFILE model	[3]
soil area [dm ²]	TA _g	Calculated	-
upstream H ⁺ water concentration [mol H ⁺ L ⁻¹]	C _{g-1}	Calculated	-
upstream flow [L/yr]	Q _{g-1}	Calculated. The directional flow was taken from 0.5° x 0.5° river network from Voromarty et al	[4]
downstream flow [L/yr]	Q _{g+1}	Calculated. The directional flow was taken from 0.5° x 0.5° river network from Voromarty et al	[4]

The soil solution H⁺ concentration travelling to surface waters was evaluated with the PROFILE model. PROFILE is a geochemical steady-state model that uses the atmospheric deposition levels of acidifying and base cations substances, weather

characteristics and soil parameters to predict stream water output pH values. The model is based on the mass balance calculations of different soil layers. From input parameters, it reproduces the soil layer solution composition as defined by cation exchange reactions involving H, Al and BC, silicate weathering as well as biological processes. The weathering rates of ions are calculated from independent geophysical properties, making it possible to account for spatial differentiation.

The PROFILE model was identified as a possible alternative to typically used surface water models, such as the Steady State Water Chemistry (SSWC) model [7]. While Rapp & Bishop evaluated critical loads for regions in Scandinavia, they could not further validate the PROFILE model's applicability in other regions of the world. Rapp & Bishop also listed some concerns about PROFILE lack of horizontal flow out of soil layers and an adequate definition of an effective soil depth.

Rapp & Bishop stated that the incorporation of lateral flow in the model formulation would diminish the sensitivity in model output caused by variations in soil depth but would raise questions in regards to the routing of the water. As such, the matter cannot be help for the time being.

As for the effective soil depth, Rapp et Bishop [7] found, without lateral flow, that the effective soil depth should be between 0.59 m and 0.79 m. In this study, we used a depth of 1 meter. However, we included soil depth variations in the RF uncertainty analysis.

Fish species richness-pH regressions

Table A5.3 presents the fish species richness-pH regressions used to calculate the effect factor. The regression coefficients were obtained according to eq A5.1.

$$\ln(SR_{C_k}) = \left(a \times (pH)^2 + b \times pH + c \right) \quad (A5.1)$$

Where SR_{C_k} is the lake k species richness, C_k is the H^+ concentration in lake k and a , b and c are region specific regression coefficients (i.e. North America, Tropical America, Temperate Europe and Asia, Africa and tropical Asia).

Amarasinghe et Welcomme's (2001) regressions coefficients involving pH were used as is. In the event that H^+ concentration-species richness regressions were not provided by

Amarasinghe et Welcomme, due in all likelihood to poor correlation, we calculated the species richness in lakes according to lake area and cross-referenced these values with calculated background H^+ concentration (C_g).

Regions for which H^+ concentration-species richness regression coefficients were available (see Table SI 3) covers 61.6% of the world lakes numbers. Remaining regions for which these regressions coefficients were not provided are (share of the numbers of lakes in parentheses): the boreal forest/taiga of northern Europa and Asia, (12.43%), North America at latitudes higher than $66^\circ N$ (12.61%), the Asian tundra (5.56%) and the non-tropical regions of North America at latitudes lower than $34^\circ N$ (3.64%). Remaining regions of the world represent a total share of about 4%.

The regions of North America above the $66^\circ N$ parallel and non-tropical regions below the $34^\circ N$ parallel were approximated by the North American regression. Northern Europe and Asia were approximated by the North American regression as well since the boreal forest/taiga of Canada shares the same latitude and this biome largely contributes to determine the North American regression.

Since the North American region above the $66^\circ N$ parallel is mostly comprised of tundra, the Asian tundra region was also approximated by the North American regression.

The tropical regions of Australia and Oceania were approximated by the tropical Asia regression while their temperate regions were approximated by the temperate Europe and Asia regression.

Tableau A5.3: Coefficients a, b and c of the fish species richness- pH regressions. Values in [] is the 95% confidence bounds. R^2 is the coefficient of determination of the fit

Regions	% world lake	a	b	c	Optimum pH	R^2
Amarasinghe et Welcomme's (2001) regressions coefficients						
North America* (34° to 66° N)	41.51	-	0.3016 [-0.0015 to 0.6316]	0.0291 [-2.134 to 2.288]	-	0.14
Tropical America	4.43	-0.0659 [-0.07492 to -0.05683]	1.0198 [0.8953 to 1.144]	-1.6988 [-2.124 to -1.273]	7.71	0.03
Temperate South America	1.32	-0.0664 [-0.07978 to -0.05308]	1.1491 [0.9602 to 1.338]	-3.5114 [-4.170 to -2.852]	8.6	0.38
Africa	3.19	-0.071 [-0.08868 to -0.05324]	1.1643 [0.9075 to 1.421]	-3.0073 [-3.927 to -2.088]	8.17	0.02
Temperate Europe and Asia*	8.06	-1.551 [-3.367 to 0.1674]	24.7210 [0.8594 to 47.94]	-94.75 [-167.7 to -14.73]	7.94	0.33
Tropical Asia	3.09	0.0333 [0.008405 to 0.0582]	-0.2612 [-0.5944 to 0.0721]	1.7956 [0.6906 to 2.901]	-	0.04
Approximated regressions coefficients based on similar climatic conditions						
boreal forest/taiga of northern Europa and Asia	12.43	-	0.3016 [-0.0015 to 0.6316]	0.0291 [-2.134 to 2.288]	-	
North America (>66°N)	12.61	-	0.3016 [-0.0015 to 0.6316]	0.0291 [-2.134 to 2.288]	-	

Asian tundra	5.56	-	0.3016 [-0.0015 to 0.6316]	0.0291 [-2.134 to 2.288]	-	
Non-tropical North America (<34oN)	3.64	-	0.3016 [-0.0015 to 0.6316]	0.0291 [-2.134 to 2.288]	-	
Tropical Oceania and Australia	2.02	0.0333 [0.008405 to 0.0582]	-0.2612 [-0.5944 to 0.0721]	1.7956 [0.6906 to 2.901]	-	
Temperate Oceania and Australia	2.14	-1.551 [-3.367 to 0.1674]	24.7210 [0.8594 to 47.94]	-94.75 [-167.7 to -14.73]	7.94	0.33

* [] for these regions were calculated from a generated distribution with similar a, b, c and R²

Figure A5-1 shows an example of the influence of the regression coefficients a , b and c on the pH-species richness curve. Example used the coefficients from the Tropical America

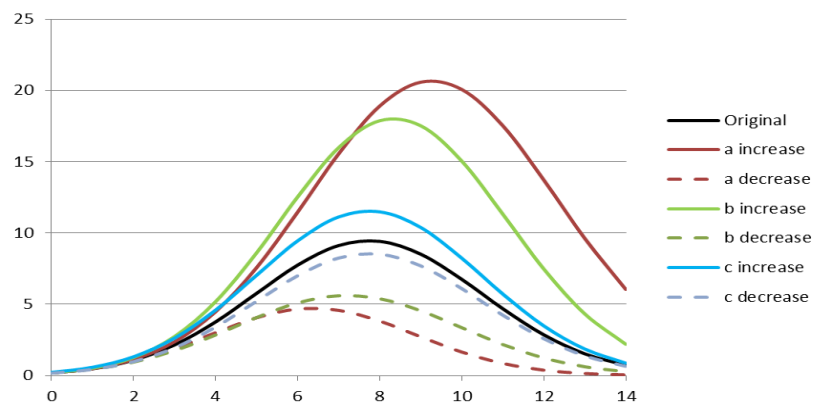


Figure A5-1: Example of the influence of regression coefficients a , b and c .

Figure A5-2 illustrates the used pH-species richness curves.

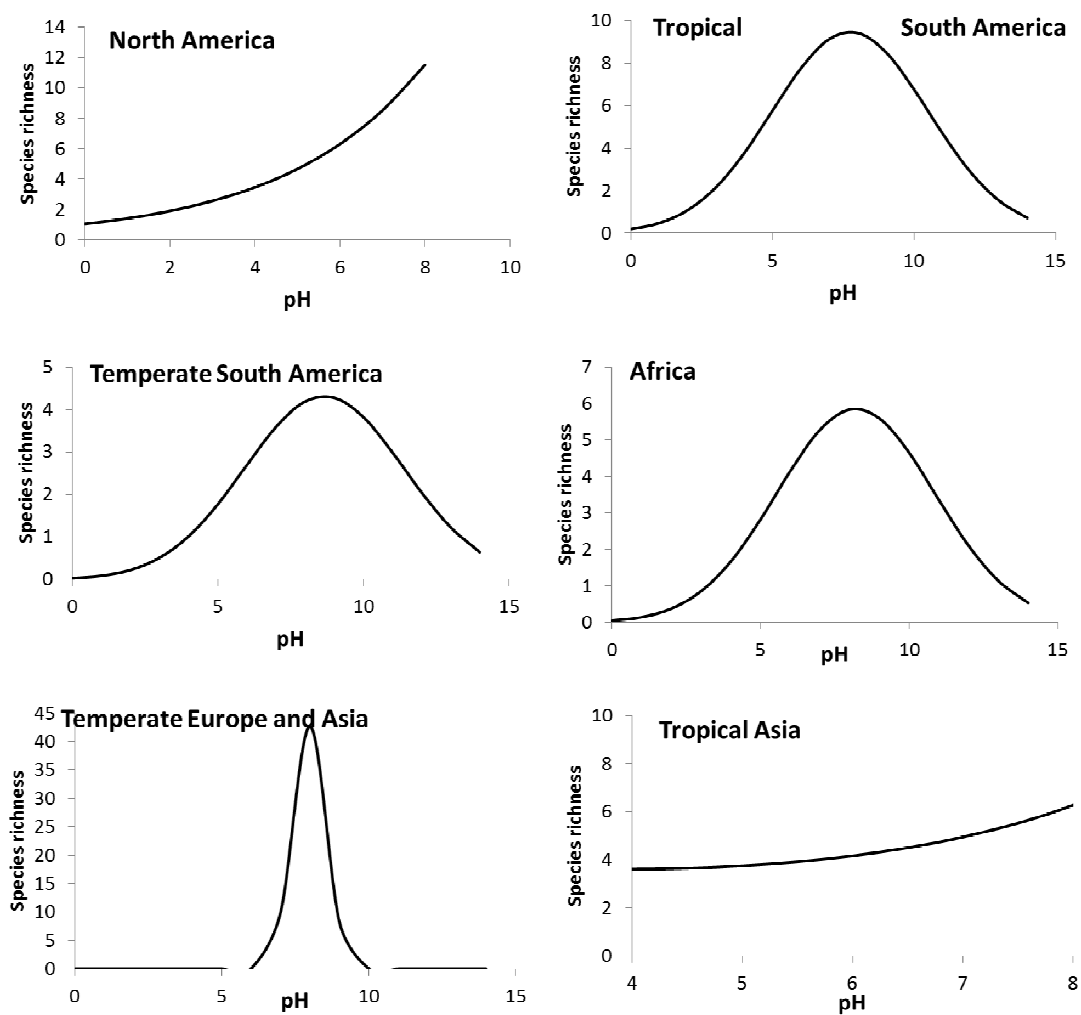


Figure A5-2: pH-species richness curves.

Uncertainty analysis

The uncertainty in each FF was specified with a lognormal distribution, defined by the calculated FFs and a standard deviation that increased proportionally with distance from the emission location, following observations in Roy et al. [22]. To ensure coherence, the sum of the sampled FFs, for the deposition locations, was evaluated and could not amount to more than $1 \text{ kg}_{\text{deposited}}/\text{kg}_{\text{emitted}}$. If the sum exceeded this limit, the samples were discarded and new values were sampled.

The 95% confidence interval for the water H^+ concentration is presented in Figure A5-3. It was calculated from Tableau A5.4 input parameter variations.

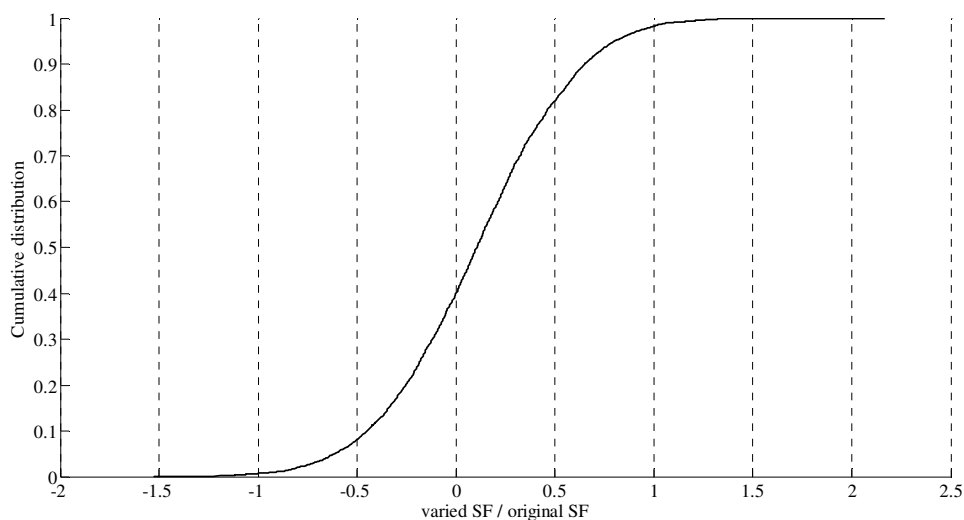


Figure A5-3: Variations of the water H^+ concentration.

Table A5.4: Uncertainty analysis for the water H⁺ concentration

Parameter		95% confidence intervals	Reference
Atmospheric deposits H ⁺ concentration [mol H ⁺ L ⁻¹]	C _{a,g}	factor of ± 10	Figure SI 3
Precipitation [L/yr]	P _{a,g}	$\pm 10\%$ within an atmospheric grid	[1]
lake areas [dm ²]	LA _g	-	
soil solution H ⁺ concentration travelling to surface water [mol H ⁺ L ⁻¹]	C _{t,g}	factor of ± 10 . Calculated from the input parameter spatial variations from Roy et al. [9] and soil depths variations	Figure SI 4
Runoff [dm/yr]	R _{t,g}	$\pm 10\%$. Calculated from the input parameter spatial variations from Roy et al.[9] and soil depths variations	Figure SI 5
soil area [dm ²]	TA _g	-	-
upstream H ⁺ water concentration [mol H ⁺ L ⁻¹]	C _{g-1}	Calculated	-
upstream flow [L/yr]	Q _{g-1}	Calculated	-
downstream flow [L/yr]	Q _{g+1}	Calculated	-
evaporation flow [L/yr]	Q _{e,g}	Based on the same database than precipitation: $\pm 10\%$	[5, 6]

Figures A5-4 to A5-6 represent the distribution functions of the atmospheric H⁺ concentration, the soil solution H⁺ concentration travelling to surface water and the runoff, respectively.

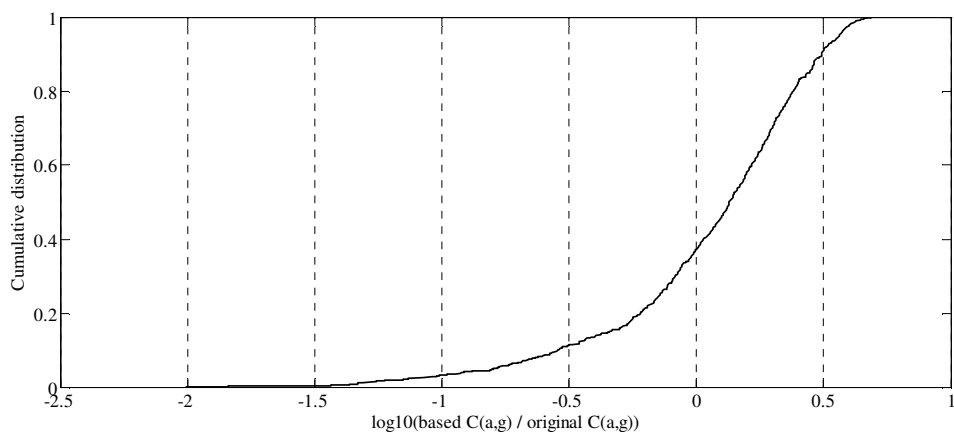


Figure A5-4: Variations of the atmospheric H⁺ concentration.

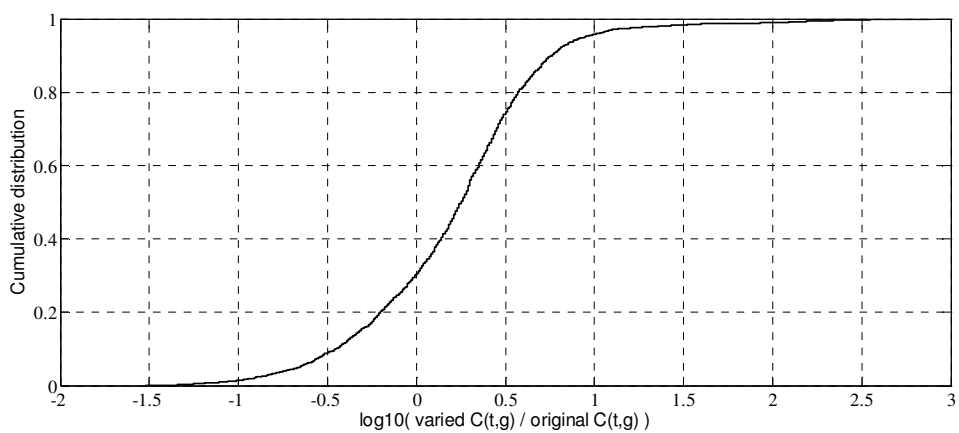


Figure A5-5: Variations of the soil solution H⁺ concentration travelling to surface water.

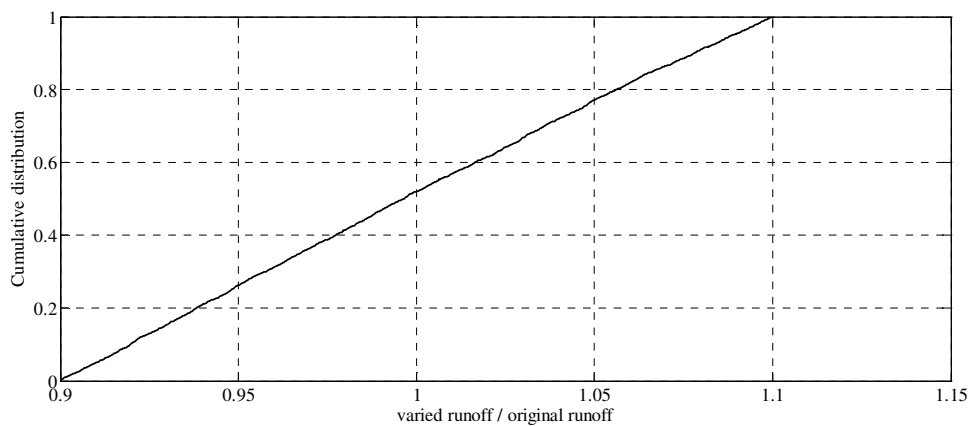


Figure A5-6: Variations of the runoff.

The uncertainty in each EF was based on uncertainty in the pH estimates (thus the working point of the pH-PDF relationship curve) and uncertainty in the model regression. The 95% confidence intervals for pH were taken from Roy et al.'s terrestrial acidification pH estimation with the PROFILE model [9]. The 95% confidence intervals of each regression coefficients were calculated with MATLAB and are presented in Tableau A5.3.

Characterization factors

Tableau A5-5: Global default endpoint oriented characterization factors

Emitted Substance	ΣFF Keq (kg emitted) ⁻¹	$\Sigma FF \times RF$ mol H+ m2 yr (kg emitted L) ⁻¹	CF [m2 yr (kg emitted) ⁻¹]
NO_x	3.83×10^{-9}	1.70×10^{-4}	4.43×10^2
NH₃	1.06×10^{-8}	2.73×10^{-4}	4.63×10^2
SO₂	6.08×10^{-9}	3.61×10^{-4}	2.81×10^3

Tableau A5- 6: Continental endpoint oriented characterization factors for NO_x

Continents	ΣFF Keq (kg emitted) ⁻¹	$\Sigma FF \times RF$ mol H+ m2 yr (kg emitted L) ⁻¹	CF [m2 yr (kg emitted) ⁻¹]
North America	4.18×10^{-9}	3.91×10^{-4}	9.55×10^1
South America	3.20×10^{-9}	1.46×10^{-5}	1.55×10^0
Europe	4.87×10^{-9}	5.26×10^{-4}	2.87×10^3
Asia	3.93×10^{-9}	3.43×10^{-5}	5.51×10^1
Africa	3.03×10^{-9}	6.67×10^{-5}	1.57×10^1
Australia	3.32×10^{-9}	7.82×10^{-7}	8.93×10^{-1}
Oceania	3.93×10^{-9}	4.84×10^{-6}	4.23×10^0

Tableau A5.7: Continental endpoint oriented characterization factors for NH₃

Continents	$\sum FF$ [K _{eq} (kg emitted) ⁻¹]	$\sum FF \times RF$ [mol H+ m ² yr (kg emitted L) ⁻¹]	CF [m ² yr (kg emitted) ⁻¹]
North America	1.21×10 ⁻⁸	1.51×10 ⁻³	5.17×10 ²
South America	1.02×10 ⁻⁸	8.81×10 ⁻⁵	3.41×10 ¹
Europe	1.32×10 ⁻⁸	8.70×10 ⁻⁴	4.33×10 ³
Asia	1.01×10 ⁻⁸	7.38×10 ⁻⁵	3.64×10 ¹
Africa	9.92×10 ⁻⁹	3.13×10 ⁻⁴	7.59×10 ¹
Australia	1.08×10 ⁻⁸	2.99×10 ⁻⁶	3.16×10 ⁰
Oceania	1.26×10 ⁻⁸	1.51×10 ⁻⁵	1.74×10 ¹

Tableau A5.8: Continental endpoint oriented characterization factors for SO₂

Continents	$\sum FF$ [K _{eq} (kg emitted) ⁻¹]	$\sum FF \times RF$ [mol H+ m ² yr (kg emitted L) ⁻¹]	CF [m ² yr (kg emitted) ⁻¹]
North America	6.25×10 ⁻⁹	1.47×10 ⁻³	1.70×10 ⁴
South America	5.46×10 ⁻⁹	1.52×10 ⁻⁴	3.95×10 ¹
Europe	7.31×10 ⁻⁹	1.40×10 ⁻³	7.76×10 ³
Asia	5.94×10 ⁻⁹	1.10×10 ⁻⁴	2.80×10 ²
Africa	5.38×10 ⁻⁹	1.15×10 ⁻⁴	8.26×10 ¹
Australia	5.70×10 ⁻⁹	1.41×10 ⁻⁶	2.79×10 ⁰
Oceania	5.56×10 ⁻⁹	2.22×10 ⁻⁵	8.05×10 ¹

Tableau A5.9: Country endpoint oriented characterization factors for NO_x

Country	$\sum FF$ [Keq (kg emitted) ⁻¹]	$\sum FF \times RF$ [mol H+ m2 yr (kg emitted L) ⁻¹]	CF [m2 yr (kg emitted) ⁻¹]		$\sum FF$ [Keq (kg emitted) ⁻¹]	$\sum FF \times RF$ [mol H+ m2 yr (kg emitted L) ⁻¹]	CF [m2 yr (kg emitted) ⁻¹]
Afghanistan	3.73E-09	2.86E-05	4.94E+01	Lebanon	3.83E-09	8.39E-05	2.45E+02
Albania	4.25E-09	1.47E-04	7.17E+02	Lesotho	3.50E-09	2.54E-05	1.46E+00
Algeria	3.75E-09	5.45E-05	2.41E+02	Liberia	2.72E-09	6.49E-06	3.72E+00
American Samoa	3.74E-09	1.27E-06	5.89E-01	Libya	3.58E-09	4.91E-05	1.79E+02
Andorra	4.34E-09	1.05E-04	5.15E+02	Liechtenstein	4.80E-09	2.55E-04	1.27E+03
Angola	2.90E-09	2.55E-05	7.43E-01	Lithuania	5.19E-09	1.30E-03	7.32E+03
Anguilla	3.22E-09	1.23E-05	1.45E+01	Luxembourg	4.92E-09	2.70E-04	1.35E+03
Antarctica	4.22E-09	7.92E-06	7.74E-01	Macedonia	4.35E-09	1.71E-04	8.48E+02
Antigua & Barbuda	2.84E-09	1.02E-05	1.37E+01	Madagascar	3.01E-09	4.28E-05	1.29E+00
Argentina	3.51E-09	1.79E-05	1.14E+00	Malawi	2.98E-09	1.45E-04	2.35E+00
Armenia	4.28E-09	2.25E-04	4.91E+02	Malaysia	3.08E-09	4.90E-06	9.87E-01
Aruba	3.22E-09	1.29E-05	4.27E+00	Mali	3.22E-09	1.92E-05	2.43E+01
Australia	3.32E-09	7.82E-07	8.93E-01	Malta	3.81E-09	7.54E-05	3.26E+02
Austria	4.79E-09	3.05E-04	1.59E+03	Martinique	2.54E-09	7.26E-06	5.07E+00
Azerbaijan	4.32E-09	2.04E-04	4.24E+02	Mauritania	3.24E-09	5.09E-05	3.05E+01
Bahamas	3.20E-09	4.20E-05	2.73E+01	Mauritius	3.31E-09	2.49E-05	9.83E-01
Bahrain	3.48E-09	1.84E-05	3.16E+01	Mayotte	2.97E-09	7.24E-05	2.25E+00
Bangladesh	3.45E-09	1.46E-05	7.52E+00	Mexico	3.54E-09	8.08E-05	3.17E+01
Barbados	3.12E-09	7.36E-06	8.86E+00	Moldova	4.72E-09	4.26E-04	2.25E+03
Belarus	5.08E-09	1.17E-03	6.64E+03	Micronesia	3.02E-09	1.48E-06	2.67E-01
Belgium	4.92E-09	2.67E-04	1.33E+03	Mongolia	4.31E-09	2.38E-05	1.81E+01
Belize	3.26E-09	3.15E-05	1.22E+01	Montserrat	2.40E-09	8.09E-06	7.05E+00
Benin	3.16E-09	1.21E-05	1.75E+01	Morocco	3.78E-09	4.19E-05	1.87E+02
Bhutan	3.55E-09	2.67E-05	1.21E+01	Mozambique	3.06E-09	7.55E-05	1.75E+00
Bolivia	3.26E-09	6.23E-05	1.29E+00	Myanmar	3.41E-09	1.35E-05	5.09E+00
Bosnia Herzegovina	4.47E-09	2.15E-04	1.11E+03	Namibia	3.10E-09	2.52E-05	1.21E+00
Botswana	3.03E-09	3.22E-05	1.14E+00	Nepal	3.60E-09	1.77E-05	1.33E+01
Brazil	3.13E-09	0.00E+00	0.00E+00	Netherlands	5.02E-09	3.24E-04	1.60E+03
British Indian	2.43E-09	8.27E-06	7.60E-01		3.22E-09	1.29E-05	4.27E+00

Ocean Territory				Antilles			
British Virgin Is	3.22E-09	2.70E-06	2.79E-01	New Caledonia	3.70E-09	1.14E-06	5.93E-01
Brunei	2.74E-09	1.23E-05	1.45E+01	New Zealand	4.02E-09	5.04E-06	4.52E+00
Bulgaria	4.43E-09	6.75E-06	1.44E+00	Nicaragua	3.19E-09	2.67E-05	1.28E+01
Burkina Faso	3.18E-09	2.08E-04	1.03E+03	Niger	3.20E-09	2.63E-05	4.43E+01
Burundi	2.67E-09	1.35E-05	2.16E+01	Nigeria	3.10E-09	1.63E-05	1.98E+01
Cambodia	3.02E-09	2.71E-04	4.71E+00	Niue	3.92E-09	1.30E-06	2.22E-01
Cameroon	2.80E-09	1.74E-05	2.53E+00	North Korea	4.24E-09	2.81E-05	8.67E+00
Canada	4.78E-09	1.44E-05	9.72E+00	Norway	5.24E-09	6.68E-04	3.15E+03
Cape Verde	2.95E-09	8.08E-04	1.55E+02	Oman	3.30E-09	1.29E-05	1.29E+01
Central African Republic	3.06E-09	8.58E-06	1.22E+01	Palau	2.10E-09	6.80E-06	1.17E+00
Chad	3.06E-09	2.52E-05	7.79E+00	Pakistan	3.45E-09	2.08E-05	2.43E+01
Chile	3.56E-09	2.57E-05	2.38E+01	Panama	3.16E-09	1.59E-05	1.12E+01
China	3.98E-09	2.65E-05	1.46E+00	Papua New Guinea	2.62E-09	1.46E-06	3.12E-01
Christmas Is	2.34E-09	2.59E-05	8.57E+00	Paraguay	3.16E-09	1.47E-05	7.69E-01
Colombia	3.08E-09	1.06E-05	6.71E+00	Peru	3.22E-09	4.81E-05	2.15E+00
Congo	2.30E-09	1.49E-05	1.50E+00	Philippines	2.98E-09	1.01E-05	2.28E+00
Congo DRC	2.63E-09	9.72E-05	2.69E+00	Pitcairn island	4.12E-09	1.92E-06	1.85E-01
Comoros	2.82E-09	7.97E-05	2.18E+00	Poland	5.04E-09	6.59E-04	3.58E+03
Cook island	4.00E-09	1.43E-06	2.09E-01	Portugal	4.19E-09	7.07E-05	3.42E+02
Costa Rica	3.34E-09	2.03E-05	1.23E+01	Puerto Rico	3.20E-09	1.32E-05	1.19E+01
Cote d'Ivoire	3.07E-09	8.91E-06	8.69E+00	Qatar	3.48E-09	1.80E-05	3.08E+01
Croatia	4.61E-09	2.50E-04	1.30E+03	Reunion	3.28E-09	2.84E-05	1.18E+00
Cuba	3.20E-09	3.10E-05	1.53E+01	Romania	4.62E-09	3.24E-04	1.70E+03
Cyprus	3.91E-09	9.10E-05	3.04E+02	Russia	5.12E-09	5.30E-04	3.00E+03
Czech Republic	4.95E-09	4.27E-04	2.25E+03	Rwanda	2.28E-09	2.14E-04	4.37E+00
Denmark	5.19E-09	5.84E-04	2.71E+03	Samoa	3.75E-09	1.26E-06	5.77E-01
Djibouti	2.82E-09	3.74E-05	1.29E+01	Sao Tome & Principe	1.90E-09	4.52E-06	1.02E+00
Dominican Republic	3.21E-09	1.71E-05	1.15E+01	Saudi Arabia	3.40E-09	2.84E-05	5.24E+01
Ecuador	3.32E-09	8.46E-06	4.28E+00	Senegal	3.25E-09	7.12E-05	1.58E+01
Egypt	3.59E-09	4.67E-05	1.29E+02	Serbia &	4.51E-09	2.28E-04	1.18E+03

				Montenegro			
El Salvador	3.30E-09	2.60E-05	1.24E+01	Seychelles	3.06E-09	8.13E-05	2.83E+00
Equatorial Guinea	2.31E-09	9.42E-06	2.78E+00	Sierra Leone	2.79E-09	9.41E-06	5.11E+00
Eritrea	2.94E-09	3.13E-05	2.20E+01	Slovakia	4.88E-09	4.39E-04	2.38E+03
Estonia	5.29E-09	2.21E-03	1.27E+04	Slovenia	4.65E-09	2.46E-04	1.27E+03
Ethiopia	3.05E-09	5.57E-05	1.21E+01	Solomon Is	3.11E-09	5.62E-07	1.61E-01
Faroe Is	3.34E-09	2.38E-04	1.24E+03	Somalia	3.13E-09	7.28E-05	8.37E+00
Falkland island	4.02E-09	9.54E-06	1.01E+00	South Africa	3.47E-09	2.75E-05	1.57E+00
				South Georgia & the South sandwich island	3.71E-09	1.09E-05	1.47E+00
Fiji	3.77E-09	1.16E-06	6.17E-01	South Korea	3.95E-09	3.20E-05	1.06E+01
Finland	5.30E-09	2.75E-03	1.59E+04	Spain	4.26E-09	8.27E-05	4.03E+02
France	4.69E-09	1.87E-04	9.28E+02	Sri Lanka	3.10E-09	6.98E-06	1.94E+00
French Guiana	3.01E-09	4.57E-06	1.03E+00				
French Polynesia	3.88E-09	1.15E-06	4.09E-01	St Helena	2.44E-09	9.51E-06	3.51E-01
French Southern Antarctic Lands	3.61E-09	1.01E-05	1.04E+00				
				St Lucia	2.54E-09	7.26E-06	5.07E+00
Gabon	2.25E-09	1.08E-05	1.63E+00	St Kitts & Nevis	3.22E-09	1.23E-05	1.45E+01
Gaza Strip	3.74E-09	7.00E-05	2.06E+02	Sudan	3.09E-09	4.91E-05	1.45E+01
Georgia	4.42E-09	1.84E-04	6.48E+02	Suriname	2.97E-09	5.31E-06	1.30E+00
Germany	4.99E-09	3.77E-04	1.89E+03	Svalbard	4.53E-09	1.31E-04	6.92E+02
Ghana	3.14E-09	9.99E-06	1.24E+01	Swaziland	3.44E-09	3.03E-05	1.46E+00
Greece	4.16E-09	1.27E-04	5.94E+02	Sweden	5.24E-09	1.00E-03	4.52E+03
Greenland	3.43E-09	7.20E-05	2.14E+02	Switzerland	4.71E-09	2.23E-04	1.11E+03
Grenada	3.31E-09	6.93E-06	5.50E+00	Syria	3.99E-09	1.10E-04	3.21E+02
Guadeloupe	2.40E-09	8.09E-06	7.05E+00	Tajikistan	4.03E-09	3.55E-05	6.73E+01
Guam	3.03E-09	1.22E-05	4.15E+00	Tanzania	3.00E-09	3.26E-04	5.68E+00
Guatemala	3.24E-09	3.13E-05	1.35E+01	Thailand	3.07E-09	1.32E-05	3.37E+00
Guinea	3.05E-09	0.00E+00	0.00E+00	Gambia	3.26E-09	5.14E-05	1.37E+01
Guinea-Bissau	3.06E-09	1.38E-05	9.17E+00	East Timor	2.73E-09	1.45E-06	2.48E-01
Guyana	3.06E-09	2.12E-05	8.45E+00	Togo	3.15E-09	1.11E-05	1.43E+01
Haiti	3.11E-09	6.17E-06	3.27E+00	Tonga	3.93E-09	1.27E-06	2.70E-01

Honduras	3.27E-09	1.89E-05	1.19E+01	Trinidad Tobago	3.26E-09	5.42E-06	3.08E+00
Hungary	4.77E-09	2.64E-05	1.26E+01	Tunisia	3.74E-09	6.90E-05	3.01E+02
Iceland	4.62E-09	3.57E-04	1.91E+03	Turkey	4.18E-09	1.59E-04	5.45E+02
India	3.49E-09	9.67E-05	4.34E+02	Turkmenistan	4.05E-09	5.13E-05	1.30E+02
Indonesia	2.97E-09	1.28E-05	9.53E+00	Turks & Caicos Is	2.17E-09	2.23E-05	3.51E+01
Iran	3.80E-09	3.57E-06	6.77E-01	Uganda	2.95E-09	1.63E-04	6.92E+00
Iraq	3.86E-09	7.96E-05	1.40E+02	Ukraine	4.89E-09	5.34E-04	2.90E+03
Ireland	4.66E-09	1.13E-04	2.32E+02	United Arab Emirates	3.37E-09	1.36E-05	1.65E+01
Isle of Man	4.81E-09	1.68E-04	8.25E+02	United Kingdom	4.88E-09	2.19E-04	1.08E+03
Israel	3.73E-09	2.03E-04	1.00E+03	USA	4.20E-09	3.76E-04	9.64E+01
Italy	4.49E-09	7.40E-05	1.91E+02	Uruguay	3.54E-09	2.33E-05	1.27E+00
Jamaica	3.19E-09	1.79E-04	8.90E+02	Uzbekistan	4.16E-09	3.92E-05	9.80E+01
Jan Mayen	4.21E-09	2.13E-05	1.00E+01	Vanuatu	3.64E-09	9.88E-07	3.20E-01
Japan	3.98E-09	1.31E-04	6.53E+02	Venezuela	3.14E-09	7.66E-06	3.55E+00
Jersey	4.77E-09	1.87E-04	9.27E+02	Vietnam	3.23E-09	1.20E-05	3.30E+00
Jordan	3.74E-09	8.27E-05	1.93E+02	Virgin Is	3.22E-09	1.23E-05	1.45E+01
Kazakhstan	4.76E-09	5.88E-05	2.17E+02	Wallis & Futuna	3.78E-09	9.73E-07	2.72E-01
Kenya	3.11E-09	1.90E-04	8.00E+00	West Bank	3.76E-09	9.30E-05	2.02E+02
Kiribati	3.56E-09	3.58E-06	1.85E+00	Western Sahara	3.25E-09	2.58E-05	7.32E+01
Kuwait	3.65E-09	4.25E-05	9.25E+01	Yemen	3.10E-09	2.33E-05	1.52E+01
Kyrgyzstan	4.18E-09	6.38E-05	1.09E+02	Zambia	3.02E-09	1.21E-04	1.97E+00
Laos	3.24E-09	1.23E-05	3.61E+00	Zimbabwe	3.08E-09	5.21E-05	1.35E+00
Latvia	5.23E-09	1.60E-03	9.05E+03				

Tableau A5.10: Country endpoint oriented characterization factors for NH₃

Country	$\sum FF$ [K _{eq} emitted) ⁻¹] (kg	$\sum FF \times RF$ [mol H+ m ² yr (kg emitted L) ⁻¹] (kg	CF [m ² yr emitted) ⁻¹] (kg		$\sum FF$ [K _{eq} emitted) ⁻¹] (kg	$\sum FF \times RF$ [mol H+ m ² yr (kg emitted L) ⁻¹] (kg	CF [m ² yr emitted) ⁻¹] (kg
Afghanistan	1.05E-08	5.86E-05	6.10E+01	Lebanon	1.08E-08	1.51E-04	2.97E+02
Albania	1.21E-08	2.90E-04	1.27E+03	Lesotho	1.09E-08	8.72E-05	3.49E+00
Algeria	1.13E-08	1.48E-04	6.11E+02	Liberia	9.78E-09	4.41E-05	1.05E+02
American Samoa	9.80E-09	1.04E-06	2.70E-01	Libya	1.07E-08	1.39E-04	4.35E+02
Andorra	1.26E-08	1.73E-04	7.88E+02	Liechtenstein	1.36E-08	4.47E-04	1.88E+03
Angola	9.79E-09	1.30E-04	1.75E+01	Lithuania	1.37E-08	2.36E-03	1.28E+04
Anguilla	1.05E-08	1.16E-04	4.63E+02	Luxembourg	1.39E-08	4.36E-04	1.88E+03
Antarctica	1.83E-08	4.60E-06	2.34E-01	Macedonia	1.22E-08	3.10E-04	1.39E+03
Antigua & Barbuda	1.05E-08	1.21E-04	5.03E+02	Madagascar	1.00E-08	1.35E-04	5.43E+00
Argentina	1.16E-08	7.93E-05	5.64E+00	Malawi	9.82E-09	5.53E-04	1.51E+01
Armenia	1.14E-08	5.37E-04	4.66E+02	Malaysia	9.63E-09	1.36E-05	3.20E+00
Aruba	1.00E-08	9.77E-05	2.23E+02	Mali	1.01E-08	8.86E-05	2.33E+02
Australia	1.08E-08	2.99E-06	3.16E+00	Malta	1.15E-08	1.82E-04	7.77E+02
Austria	1.34E-08	5.15E-04	2.44E+03	Martinique	1.03E-08	9.54E-05	3.85E+02
Azerbaijan	1.13E-08	6.27E-04	3.80E+02	Mauritania	1.02E-08	2.28E-04	2.97E+02
Bahamas	1.08E-08	1.95E-04	3.62E+02	Mauritius	1.00E-08	7.77E-05	3.20E+00
Bahrain	1.05E-08	7.13E-05	6.68E+01	Mayotte	9.79E-09	2.30E-04	9.43E+00
Bangladesh	1.04E-08	2.61E-05	6.73E+00	Mexico	1.07E-08	3.55E-04	1.79E+02
Barbados	1.03E-08	9.86E-05	4.10E+02	Moldova	1.29E-08	6.55E-04	3.16E+03
Belarus	1.36E-08	2.00E-03	1.11E+04	Micronesia	9.66E-09	1.43E-05	3.70E+00
Belgium	1.40E-08	4.34E-04	1.84E+03	Mongolia	7.80E-09	2.82E-05	2.21E+01
Belize	1.02E-08	1.35E-04	1.33E+02	Montserrat	1.04E-08	1.09E-04	4.49E+02
Benin	9.89E-09	6.50E-05	1.32E+02	Morocco	1.13E-08	1.22E-04	5.25E+02
Bhutan	1.04E-08	2.10E-04	3.04E+01	Mozambique	9.98E-09	2.83E-04	1.14E+01
Bolivia	9.98E-09	5.97E-04	1.02E+01	Myanmar	1.02E-08	3.06E-05	6.12E+00
Bosnia Herzegovina	1.28E-08	3.98E-04	1.93E+03	Namibia	1.02E-08	9.40E-05	1.52E+01
Botswana	1.02E-08	1.32E-04	1.19E+01	Nepal	1.05E-08	4.56E-05	2.05E+01
Bouvet Island	1.61E-08	1.53E-06	2.89E-02	Netherlands	1.42E-08	5.46E-04	2.21E+03
Brazil	1.00E-08	4.33E-05	3.19E+01				

				Antilles			
British Indian Ocean Territory	9.69E-09	1.46E-05	1.40E+00	New Caledonia	1.01E-08	3.43E-06	9.08E-01
British Virgin Is	1.05E-08	1.16E-04	4.63E+02	New Zealand	1.28E-08	1.58E-05	1.86E+01
Brunei	9.68E-09	2.25E-05	6.34E+00	Nicaragua	9.99E-09	1.05E-04	1.06E+02
Bulgaria	1.23E-08	3.46E-04	1.51E+03	Niger	1.02E-08	1.85E-04	3.01E+02
Burkina Faso	1.00E-08	7.18E-05	1.81E+02	Nigeria	9.87E-09	8.18E-05	1.19E+02
Burundi	9.66E-09	1.13E-03	2.90E+01	Niue	1.00E-08	7.73E-07	2.04E-01
Cambodia	9.88E-09	1.10E-04	4.51E+00	North Korea	9.71E-09	6.72E-05	1.89E+01
Cameroon	9.77E-09	8.30E-05	7.43E+01	Norway	1.34E-08	1.56E-03	3.95E+03
Canada	1.33E-08	3.19E-03	5.04E+02	Oman	1.03E-08	4.00E-05	2.77E+01
Cape Verde	1.02E-08	8.78E-05	2.78E+02	Palau	9.72E-09	5.40E-05	1.88E+01
Central African Republic	9.75E-09	1.26E-04	5.05E+01	Pakistan	1.05E-08	4.17E-05	3.95E+01
Chad	9.94E-09	1.50E-04	1.41E+02	Panama	9.82E-09	5.35E-05	9.17E+01
Chile	1.21E-08	1.50E-04	8.98E+00	Papua New Guinea	9.63E-09	9.43E-06	2.23E+00
China	1.00E-08	9.00E-05	1.76E+01	Paraguay	1.04E-08	6.98E-05	7.30E+00
Christmas Is	9.69E-09	5.16E-06	1.07E+00	Peru	9.73E-09	4.52E-04	7.77E+00
Colombia	9.69E-09	3.48E-05	6.45E+01	Philippines	9.72E-09	4.80E-05	1.46E+01
Congo	9.65E-09	1.17E-04	3.25E+01	Pitcairn island	1.04E-08	1.00E-06	1.08E-01
Congo DRC	9.69E-09	4.61E-04	2.65E+01	Poland	1.38E-08	1.23E-03	6.30E+03
Comoros	9.79E-09	2.82E-04	1.11E+01	Portugal	1.23E-08	1.37E-04	6.14E+02
Cook island	1.01E-08	1.98E-07	4.44E-02	Puerto Rico	1.04E-08	1.10E-04	4.13E+02
Costa Rica	9.87E-09	6.47E-05	9.09E+01	Qatar	1.04E-08	6.50E-05	5.87E+01
Cote d'Ivoire	9.82E-09	5.12E-05	1.14E+02	Reunion	1.01E-08	9.21E-05	3.65E+00
Croatia	1.30E-08	4.52E-04	2.13E+03	Romania	1.28E-08	5.39E-04	2.63E+03
Cuba	1.05E-08	1.43E-04	2.73E+02	Russia	1.12E-08	7.86E-04	4.20E+03
Cyprus	1.10E-08	1.57E-04	3.97E+02	Rwanda	9.66E-09	1.04E-03	3.20E+01
Czech Republic	1.37E-08	7.41E-04	3.60E+03	Samoa	9.80E-09	1.07E-06	2.78E-01
Denmark	1.43E-08	1.25E-03	4.05E+03	Sao Tome & Principe	9.65E-09	4.98E-05	4.43E+01
Djibouti	9.96E-09	1.57E-04	3.44E+01	Saudi Arabia	1.04E-08	8.07E-05	7.86E+01
Dominican Republic	1.04E-08	1.06E-04	3.25E+02	Senegal	1.01E-08	3.59E-04	2.20E+02
Ecuador	9.57E-09	1.68E-05	6.54E+00	Serbia &	1.26E-08	4.04E-04	1.94E+03

				Montenegro			
Egypt	1.03E-08	1.05E-04	1.52E+02	Seychelles	9.73E-09	1.72E-04	8.18E+00
El Salvador	1.00E-08	8.35E-05	8.72E+01	Sierra Leone	9.84E-09	5.33E-05	1.27E+02
Equatorial Guinea	9.69E-09	7.39E-05	5.42E+01	Slovakia	1.34E-08	7.30E-04	3.77E+03
Eritrea	1.01E-08	9.42E-05	4.89E+01	Slovenia	1.31E-08	4.09E-04	1.97E+03
Estonia	1.35E-08	4.56E-03	2.47E+04	Solomon Is	9.66E-09	3.91E-06	9.92E-01
Ethiopia	9.85E-09	1.54E-04	3.07E+01	Somalia	9.79E-09	1.51E-04	1.75E+01
Faroe Is	1.44E-08	2.96E-04	1.30E+03	South Africa	1.08E-08	9.58E-05	5.36E+00
Falkland island	1.50E-08	1.43E-05	1.28E+00	South Georgia & the South sandwich island	1.56E-08	6.06E-06	3.33E-01
Fiji	9.90E-09	2.42E-06	6.59E-01	South Korea	9.77E-09	5.19E-05	1.41E+01
Finland	1.29E-08	8.87E-03	4.81E+04	Spain	1.24E-08	1.49E-04	6.74E+02
France	1.35E-08	2.74E-04	1.18E+03	Sri Lanka	9.74E-09	2.24E-05	4.01E+00
French Guiana	9.82E-09	5.02E-05	1.71E+02	St Helena	9.84E-09	1.59E-05	2.63E+01
French Polynesia	9.79E-09	2.56E-07	6.56E-02	St Lucia	1.03E-08	9.54E-05	3.85E+02
French Southern Antarctic Lands	1.46E-08	3.65E-07	2.90E-02	St Kitts & Nevis	1.05E-08	1.16E-04	4.63E+02
Gabon	9.65E-09	9.52E-05	3.75E+01	Sudan	9.87E-09	1.67E-04	5.04E+01
Gaza Strip	1.06E-08	1.41E-04	2.57E+02	Suriname	9.81E-09	5.30E-05	1.67E+02
Georgia	1.16E-08	2.33E-04	5.92E+02	Svalbard	1.05E-08	1.93E-04	9.96E+02
Germany	1.40E-08	6.54E-04	2.78E+03	Swaziland	1.06E-08	1.21E-04	5.83E+00
Ghana	9.83E-09	5.49E-05	1.13E+02	Sweden	1.37E-08	3.43E-03	6.96E+03
Greece	1.18E-08	2.46E-04	1.05E+03	Switzerland	1.34E-08	3.89E-04	1.59E+03
Greenland	1.36E-08	9.66E-05	2.04E+02	Syria	1.09E-08	1.70E-04	3.09E+02
Grenada	1.01E-08	7.99E-05	3.17E+02	Tajikistan	1.04E-08	6.38E-05	7.19E+01
Guadeloupe	1.04E-08	1.09E-04	4.49E+02	Tanzania	9.70E-09	1.79E-03	3.53E+01
Guam	9.88E-09	6.99E-05	2.40E+01	Thailand	1.00E-08	3.49E-05	4.41E+00
Guatemala	1.01E-08	1.23E-04	1.13E+02	Gambia	1.01E-08	1.51E-04	2.19E+02
Guinea	9.91E-09	6.23E-05	1.48E+02	East Timor	9.68E-09	1.06E-05	2.87E+00
Guinea-Bissau	9.96E-09	8.02E-05	1.74E+02	Togo	9.84E-09	6.18E-05	1.16E+02
Guyana	9.79E-09	4.33E-05	1.44E+02	Tonga	1.00E-08	1.50E-06	4.10E-01
Haiti	1.04E-08	1.08E-04	3.13E+02	Trinidad Tobago	9.98E-09	5.83E-05	2.25E+02
Honduras	1.00E-08	8.86E-05	1.04E+02	Tunisia	1.14E-08	1.55E-04	6.66E+02

Hungary	1.32E-08	6.06E-04	3.00E+03	Turkey	1.14E-08	3.47E-04	6.54E+02
Iceland	1.54E-08	1.63E-04	6.15E+02	Turkmenistan	1.06E-08	8.84E-05	1.10E+02
India	1.03E-08	2.44E-05	1.11E+01	Turks & Caicos Is	1.07E-08	1.35E-04	4.24E+02
Indonesia	9.61E-09	1.13E-05	2.37E+00	Uganda	9.69E-09	7.84E-04	3.55E+01
Iran	1.07E-08	4.81E-04	1.83E+02	Ukraine	1.30E-08	8.49E-04	4.34E+03
Iraq	1.08E-08	2.40E-04	2.42E+02	United Arab Emirates	1.04E-08	5.61E-05	4.69E+01
Ireland	1.45E-08	2.48E-04	1.01E+03	United Kingdom	1.44E-08	3.22E-04	1.33E+03
Isle of Man	1.46E-08	2.97E-04	1.24E+03	US	1.23E-08	1.55E-03	6.50E+02
Israel	1.06E-08	2.48E-04	2.62E+02	Uruguay	1.13E-08	1.81E-04	1.06E+01
Italy	1.29E-08	3.39E-04	1.42E+03	Uzbekistan	1.05E-08	6.35E-05	8.23E+01
Jamaica	1.03E-08	1.06E-04	2.49E+02	Vanuatu	9.82E-09	3.01E-06	8.24E-01
Jan Mayen	1.35E-08	1.18E-04	5.55E+02	Venezuela	9.82E-09	4.32E-05	1.31E+02
Japan	9.86E-09	4.05E-05	1.49E+01	Vietnam	1.00E-08	2.76E-05	5.21E+00
Jersey	1.40E-08	2.81E-04	1.21E+03	Virgin Is	1.05E-08	1.16E-04	4.63E+02
Jordan	1.06E-08	2.52E-04	2.55E+02	Wallis & Futuna	9.78E-09	2.14E-06	5.66E-01
Kazakhstan	1.10E-08	5.88E-03	1.22E+02	West Bank	1.06E-08	3.04E-04	2.75E+02
Kenya	9.70E-09	2.47E-03	3.42E+01	Western Sahara	1.08E-08	1.28E-04	4.80E+02
Kiribati	9.57E-09	8.68E-06	2.40E-01	Yemen	1.01E-08	6.91E-05	3.48E+01
Kuwait	1.06E-08	5.12E-03	1.05E+02	Zambia	9.83E-09	4.13E-04	1.60E+01
Kyrgyzstan	1.02E-08	1.61E-02	3.53E+02	Zimbabwe	1.01E-08	1.99E-04	1.09E+01
Laos	1.00E-08	1.75E-03	4.76E+00				
Latvia	1.37E-08	6.00E-03	1.69E+04				

Tableau A5.11: Country endpoint oriented characterization factors for SO₂

Country	$\sum FF$ [Keq (kg emitted) ⁻¹]	$\sum FF \times RF$ [mol H+ m2 yr (kg emitted L) ⁻¹]	CF [m2 yr (kg emitted) ⁻¹]		$\sum FF$ [Keq (kg emitted) ⁻¹]	$\sum FF \times RF$ [mol H+ m2 yr (kg emitted L) ⁻¹]	CF [m2 yr (kg emitted) ⁻¹]
Afghanistan	5.94E-09	6.07E-05	1.52E+02	Lebanon	5.97E-09	1.09E-04	2.04E+02
Albania	6.59E-09	2.70E-04	1.33E+03	Lesotho	5.78E-09	2.91E-05	1.08E+00
Algeria	6.10E-09	1.23E-04	5.88E+02	Liberia	5.20E-09	3.27E-05	9.93E+01
American Samoa	5.06E-09	1.52E-06	8.86E+00	Libya	5.79E-09	9.92E-05	3.60E+02
Andorra	6.81E-09	2.73E-04	1.45E+03	Liechtenstein	7.36E-09	7.97E-04	4.17E+03
Angola	5.16E-09	8.00E-05	1.05E+01	Lithuania	7.90E-09	4.47E-03	2.57E+04
Anguilla	5.51E-09	6.92E-05	4.22E+02	Luxembourg	7.59E-09	7.59E-04	3.99E+03
Antarctica	9.47E-09	1.83E-06	2.01E-01	Macedonia	6.68E-09	3.20E-04	1.61E+03
Antigua & Barbuda	5.54E-09	7.46E-05	4.43E+02	Madagascar	5.29E-09	8.71E-05	2.33E+00
Argentina	5.78E-09	1.02E-04	7.82E+00	Malawi	5.21E-09	4.75E-04	9.14E+00
Armenia	6.60E-09	6.40E-04	9.15E+02	Malaysia	5.13E-09	1.06E-05	3.02E+01
Aruba	5.23E-09	5.01E-05	1.44E+02	Mali	5.31E-09	4.98E-05	1.64E+02
Australia	5.70E-09	1.41E-06	2.79E+00	Malta	6.25E-09	1.95E-04	9.12E+02
Austria	7.29E-09	9.04E-04	4.92E+03	Martinique	5.38E-09	5.20E-05	3.03E+02
Azerbaijan	6.60E-09	5.45E-04	6.45E+02	Mauritania	5.32E-09	7.69E-05	1.45E+02
Bahamas	5.74E-09	1.35E-04	1.12E+03	Mauritius	5.27E-09	3.25E-05	8.59E-01
Bahrain	5.54E-09	3.13E-05	4.48E+01	Mayotte	5.14E-09	1.22E-04	3.40E+00
Bangladesh	5.51E-09	3.25E-05	8.92E+01	Mexico	5.51E-09	2.21E-04	1.76E+03
Barbados	5.40E-09	5.42E-05	3.12E+02	Moldova	7.16E-09	1.20E-03	6.32E+03
Belarus	7.76E-09	4.30E-03	2.49E+04	Micronesia	5.03E-09	2.53E-05	1.57E+02
Belgium	7.67E-09	6.97E-04	3.63E+03	Mongolia	5.67E-09	1.44E-04	7.45E+02
Belize	5.39E-09	1.07E-04	9.10E+02	Montserrat	5.46E-09	6.24E-05	3.69E+02
Benin	5.27E-09	5.61E-05	1.41E+02	Morocco	6.01E-09	9.04E-05	4.50E+02
Bhutan	5.59E-09	1.05E-04	1.67E+02	Mozambique	5.46E-09	9.75E-05	2.72E+00
Bolivia	5.38E-09	5.02E-04	1.76E+01	Myanmar	5.56E-09	4.20E-05	1.33E+02
Bosnia Herzegovina	6.91E-09	4.78E-04	2.59E+03	Namibia	5.40E-09	2.62E-05	6.53E+00
Botswana	5.50E-09	5.68E-05	3.69E+00	Nepal	5.56E-09	4.33E-05	1.18E+02
Bouvet Island	8.51E-09	2.12E-06	3.12E-01	Netherlands	7.82E-09	7.93E-04	4.03E+03
Brazil	5.28E-09	4.06E-05	2.43E+01	Netherland	5.23E-09	5.01E-05	1.44E+02

				Antilles			
British Indian Ocean Territory	5.12E-09	8.78E-06	2.80E+00	New Caledonia	5.28E-09	8.29E-07	1.01E+00
British Virgin Is	5.51E-09	6.92E-05	4.22E+02	New Zealand	5.98E-09	2.04E-05	1.46E+01
Brunei	5.15E-09	1.60E-05	7.20E+01	Nicaragua	5.20E-09	6.09E-05	2.72E+02
Bulgaria	6.71E-09	3.67E-04	1.83E+03	Niger	5.40E-09	1.57E-04	2.57E+02
Burkina Faso	5.34E-09	6.17E-05	2.02E+02	Nigeria	5.19E-09	4.75E-05	7.91E+01
Burundi	5.13E-09	9.79E-04	2.64E+01	Niue	5.19E-09	7.32E-07	3.57E+00
Cambodia	5.32E-09	8.56E-05	7.82E+01	North Korea	5.95E-09	8.60E-05	3.49E+02
Cameroon	5.17E-09	5.10E-05	6.10E+01	Norway	7.96E-09	1.57E-03	7.20E+03
Canada	7.05E-09	3.99E-03	3.87E+04	Oman	5.44E-09	2.20E-05	3.13E+01
Cape Verde	5.31E-09	3.60E-05	1.51E+02	Palau	5.16E-09	4.22E-05	2.72E+02
Central African Republic	5.20E-09	1.01E-04	6.04E+01	Pakistan	5.72E-09	3.88E-05	9.77E+01
Chad	5.28E-09	1.19E-04	1.29E+02	Panama	5.15E-09	2.50E-05	1.42E+02
Chile	5.74E-09	1.53E-04	9.10E+00	Papua New Guinea	5.05E-09	3.41E-06	1.02E+01
China	5.81E-09	1.05E-04	2.85E+02	Paraguay	5.50E-09	1.00E-04	1.47E+01
Christmas Is	5.13E-09	2.89E-06	5.61E+00	Peru	5.21E-09	2.91E-04	3.04E+01
Colombia	5.11E-09	4.83E-05	1.74E+02	Philippines	5.27E-09	4.71E-05	2.44E+02
Congo	5.11E-09	6.85E-05	1.90E+01	Pitcairn island	5.54E-09	3.25E-06	1.45E+00
Congo DRC	5.16E-09	3.92E-04	1.90E+01	Poland	7.66E-09	1.96E-03	1.10E+04
Comoros	5.14E-09	1.52E-04	3.94E+00	Portugal	6.53E-09	1.41E-04	7.42E+02
Cook island	5.33E-09	3.46E-07	6.28E-01	Puerto Rico	5.48E-09	6.11E-05	3.85E+02
Costa Rica	5.15E-09	2.40E-05	1.36E+02	Qatar	5.54E-09	3.09E-05	4.39E+01
Cote d'Ivoire	5.24E-09	4.54E-05	1.29E+02	Reunion	5.34E-09	7.05E-05	2.29E+00
Croatia	7.08E-09	6.78E-04	3.65E+03	Romania	7.05E-09	8.23E-04	4.45E+03
Cuba	5.58E-09	1.07E-04	8.94E+02	Russia	7.72E-09	1.29E-03	7.07E+03
Cyprus	6.08E-09	1.02E-04	2.55E+02	Rwanda	5.13E-09	8.45E-04	3.04E+01
Czech Republic	7.53E-09	1.32E-03	7.25E+03	Samoa	5.06E-09	1.55E-06	9.09E+00
Denmark	8.07E-09	1.59E-03	6.90E+03	Sao Tome & Principe	5.14E-09	4.09E-05	4.81E+01
Djibouti	5.24E-09	6.69E-05	3.18E+01	Saudi Arabia	5.54E-09	4.90E-05	7.87E+01
Dominican Republic	5.45E-09	5.69E-05	3.65E+02	Senegal	5.25E-09	7.70E-05	9.13E+01

Ecuador	5.07E-09	3.07E-05	9.50E+01	Serbia & Montenegro	6.90E-09	5.01E-04	2.71E+03
Egypt	5.72E-09	9.13E-05	2.10E+02	Seychelles	5.11E-09	1.10E-04	4.17E+00
El Salvador	5.27E-09	6.92E-05	6.10E+02	Sierra Leone	5.22E-09	3.32E-05	1.03E+02
Equatorial Guinea	5.15E-09	4.30E-05	4.94E+01	Slovakia	7.44E-09	1.40E-03	7.90E+03
Eritrea	5.31E-09	6.10E-05	5.87E+01	Slovenia	7.14E-09	6.94E-04	3.78E+03
Estonia	8.06E-09	9.51E-03	5.49E+04	Solomon Is	5.05E-09	1.60E-06	7.59E+00
Ethiopia	5.22E-09	1.03E-04	4.19E+01	Somalia	5.19E-09	6.89E-05	1.98E+01
Faroe Is	8.02E-09	5.60E-04	2.90E+03	South Africa	5.72E-09	3.36E-05	1.43E+00
Falkland island	7.78E-09	7.65E-06	5.59E-01	South Georgia & the South sandwich island	8.37E-09	2.05E-06	2.36E-01
Fiji	5.09E-09	1.37E-06	8.00E+00	South Korea	5.84E-09	7.15E-05	3.29E+02
Finland	7.94E-09	1.36E-02	7.79E+04	Spain	6.71E-09	1.98E-04	1.05E+03
France	7.34E-09	5.26E-04	2.77E+03	Sri Lanka	5.16E-09	1.27E-05	1.49E+01
French Guiana	5.19E-09	3.00E-05	1.33E+02	St Helena	5.14E-09	6.02E-06	1.31E+01
French Polynesia	5.17E-09	4.42E-07	1.32E+00	St Lucia	5.38E-09	5.20E-05	3.03E+02
French Southern Antarctic Lands	7.59E-09	1.99E-06	5.99E-01	St Kitts & Nevis	5.51E-09	6.92E-05	4.22E+02
Gabon	5.12E-09	6.39E-05	3.32E+01	Sudan	5.23E-09	1.34E-04	5.94E+01
Gaza Strip	5.82E-09	9.65E-05	1.96E+02	Suriname	5.20E-09	3.29E-05	1.45E+02
Georgia	6.78E-09	4.41E-04	1.32E+03	Svalbard	7.22E-09	1.73E-04	9.47E+02
Germany	7.68E-09	1.07E-03	5.52E+03	Swaziland	5.64E-09	4.33E-05	1.36E+00
Ghana	5.25E-09	5.02E-05	1.34E+02	Sweden	7.98E-09	3.43E-03	1.17E+04
Greece	6.42E-09	1.96E-04	9.05E+02	Switzerland	7.26E-09	7.05E-04	3.68E+03
Greenland	7.66E-09	1.57E-04	7.12E+02	Syria	6.14E-09	1.89E-04	3.68E+02
Grenada	5.31E-09	4.15E-05	2.35E+02	Tajikistan	6.20E-09	8.09E-05	2.08E+02
Guadeloupe	5.46E-09	6.24E-05	3.69E+02	Tanzania	5.14E-09	1.89E-03	3.35E+01
Guam	5.19E-09	6.58E-05	4.22E+02	Thailand	5.39E-09	3.20E-05	7.58E+01
Guatemala	5.28E-09	9.62E-05	9.39E+02	Gambia	5.23E-09	8.37E-05	7.43E+01
Guinea	5.24E-09	3.60E-05	1.07E+02	East Timor	5.10E-09	4.17E-06	1.63E+01
Guinea-Bissau	5.20E-09	2.82E-05	6.68E+01	Togo	5.26E-09	5.51E-05	1.36E+02
Guyana	5.20E-09	3.44E-05	1.50E+02	Tonga	5.17E-09	8.94E-07	4.50E+00

Haiti	5.47E-09	6.43E-05	4.27E+02	Trinidad Tobago	5.25E-09	3.24E-05	1.77E+02
Honduras	5.28E-09	6.85E-05	5.72E+02	Tunisia	6.21E-09	1.54E-04	7.28E+02
Hungary	7.22E-09	9.66E-04	5.34E+03	Turkey	6.40E-09	3.45E-04	8.32E+02
Iceland	7.81E-09	3.43E-04	1.75E+03	Turkmenistan	6.32E-09	1.52E-04	3.02E+02
India	5.50E-09	2.46E-05	6.16E+01	Turks & Caicos Is	5.65E-09	9.33E-05	6.67E+02
Indonesia	5.06E-09	7.58E-06	1.96E+01	Uganda	5.15E-09	5.47E-04	3.65E+01
Iran	5.99E-09	3.09E-04	2.37E+02	Ukraine	7.36E-09	1.47E-03	8.13E+03
Iraq	6.09E-09	3.47E-04	3.65E+02	United Arab Emirates	5.47E-09	2.33E-05	3.30E+01
Ireland	7.79E-09	5.14E-04	2.65E+03	United Kingdom	7.86E-09	5.73E-04	2.97E+03
Isle of Man	7.93E-09	5.50E-04	2.85E+03	US	6.45E-09	1.62E-03	2.00E+04
Israel	5.82E-09	1.61E-04	2.18E+02	Uruguay	5.98E-09	9.17E-05	6.41E+00
Italy	6.50E-09	3.64E-04	1.78E+03	Uzbekistan	6.29E-09	8.14E-05	2.20E+02
Jamaica	5.42E-09	6.12E-05	4.84E+02	Vanuatu	4.96E-09	6.79E-07	2.12E+00
Jan Mayen	7.79E-09	2.36E-04	1.25E+03	Venezuela	5.22E-09	3.45E-05	1.54E+02
Japan	5.75E-09	1.48E-04	8.56E+02	Vietnam	5.45E-09	3.57E-05	1.09E+02
Jersey	7.59E-09	4.80E-04	2.53E+03	Virgin Is	5.51E-09	6.92E-05	4.22E+02
Jordan	5.83E-09	1.98E-04	2.28E+02	Wallis & Futuna	5.01E-09	2.30E-06	1.43E+01
Kazakhstan	7.05E-09	7.05E-05	2.50E+02	West Bank	5.84E-09	2.26E-04	2.34E+02
Kenya	5.13E-09	5.07E-04	2.46E+01	Western Sahara	5.58E-09	6.50E-05	2.89E+02
Kiribati	4.96E-09	6.36E-06	4.06E+01	Yemen	5.29E-09	3.46E-05	2.70E+01
Kuwait	5.75E-09	7.47E-05	1.13E+02	Zambia	5.22E-09	2.80E-04	7.40E+00
Kyrgyzstan	6.29E-09	9.31E-05	2.31E+02	Zimbabwe	5.40E-09	1.03E-04	3.41E+00
Laos	5.44E-09	3.06E-05	9.16E+01				
Latvia	7.97E-09	6.03E-03	3.41E+04				

Figure A5-7 details, for each continental source location, the contribution of transboundary deposition to the total impact: darker the emission zone, greater the contribution.

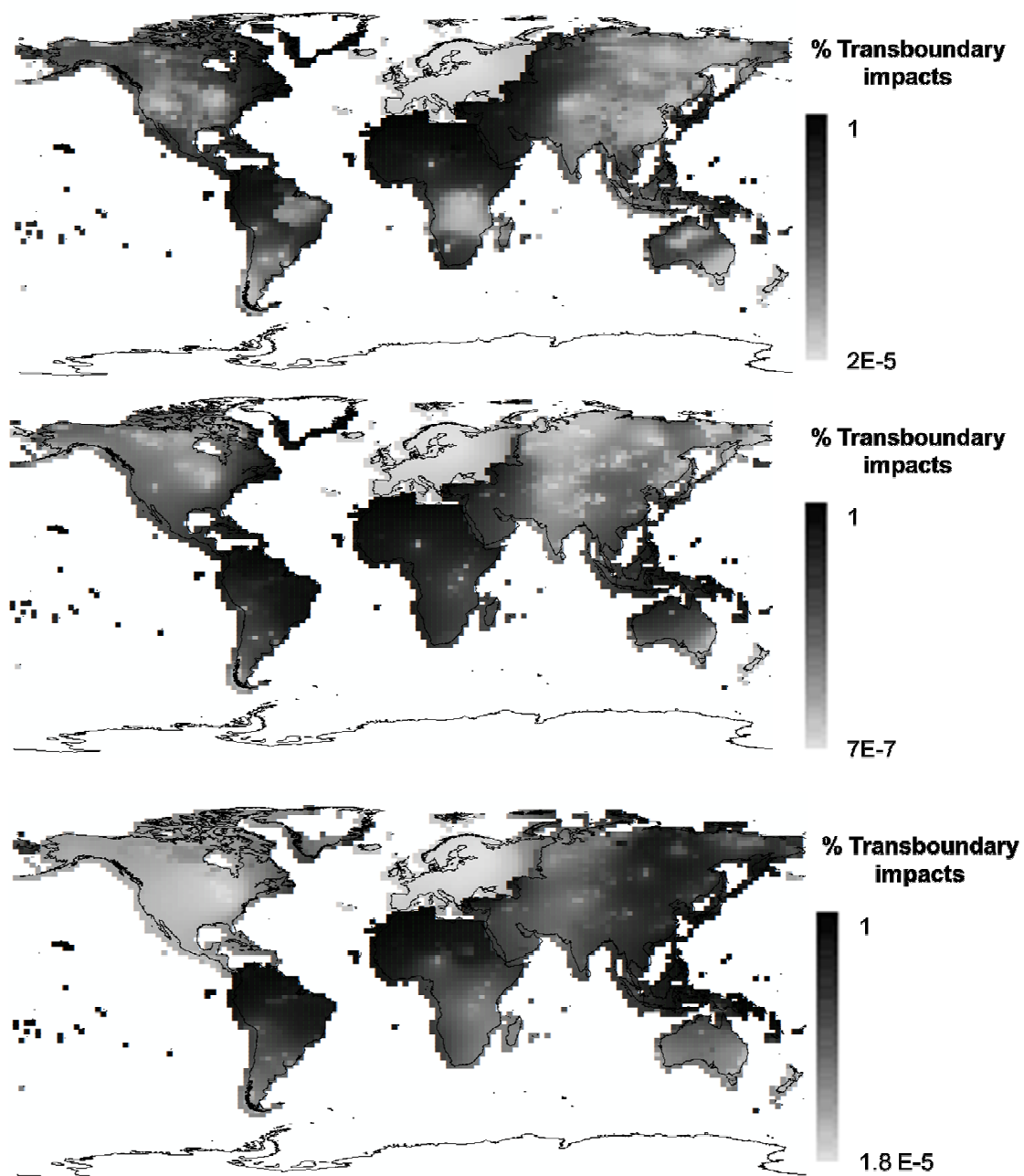


Figure A5-7: Percentage of transcontinental potential impacts of (up) NO_x, (middle) NH₃ and (down) SO₂ continental emissions

Simulated $C_{g,k}$ evaluation

We compared our simulated lake pHs with field measurements (taken at depths of less than 1 m) for 150 lakes Canada from the BQMA aquatic environment quality database. From this value and following the typical pH loss with depth, we calculated the lakes mean pHs. We then obtained the following results (Figure A5-10).

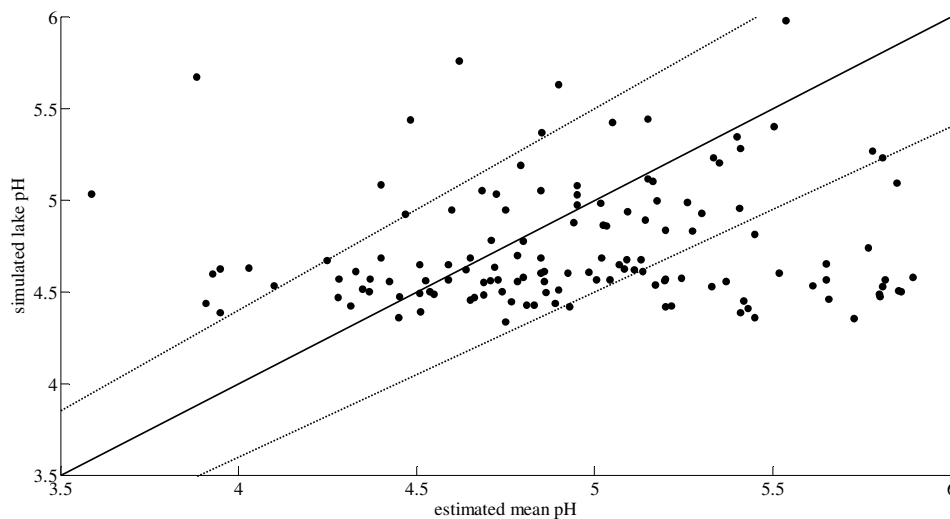


Figure A5-10: Comparison between simulated and estimated (based on field measurements) lake pHs in Canada

We also calculated the depth at which our simulated pH would be equal to lake depth pH variations. From the results in Figure A5-11, we found that, on average, our calculated pH was equal to the lake pH at a depth of 5 meters.

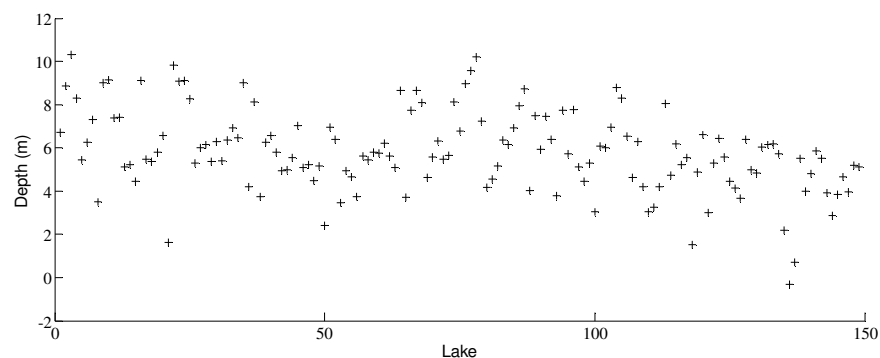


Figure A5-11: Depth at which our simulated pH should equal the lake pH depth variations

These comparison should, however, be taken lightly as field measurements are not representative of the steady-state.

Références pour l'Annexe 5

1. Hijmans, R. J.; S.E. Cameron; J.L. Parra; Jones, P. G.; Jarvis, A., Very high resolution interpolated climate surfaces for global land areas. *International journal of Climatology* **2005**, 25, (15), 1965-1978.
2. Lehner, B.; Döll, P., Development and validation of a global database of lakes, reservoirs and wetlands. *Journal of Hydrology* **2004**, 296, (1-4), 1-22.
3. Warfvinge, P.; Sverdrup, H., Calculating critical loads of acid deposition with PROFILE: a steady-state soil chemistry model. *Water, Air, and Soil pollution* **1992**, (63), 119-143.
4. Vörösmarty, C. J.; Fekete, B. M.; Meybeck, M.; Lammers R., Geomorphometric attributes of the global system of rivers at 30 minute spatial resolution (STN-30). *Journal of Hydrology* **2000**, 237, 17-39.
5. Zomer, R. J.; Trabucco, A.; Bossio, D. A.; van Straaten, O.; Verchot, L. V., Climate Change Mitigation: A Spatial Analysis of Global Land Suitability for Clean Development Mechanism Afforestation and Reforestation. . *Agriculture, ecosystems & environment* **2008**, 126, 67-80.
6. Zomer, R. J.; Bossio, D. A.; Trabucco, A.; Yuanjie, L.; Gupta, D. C.; Singh, V. P. *Trees and Water: Smallholder Agroforestry on Irrigated Lands in Northern India..* ; Colombo, 2007; pp 67-80.
7. Rapp, L.; Bishop, K., Modeling Surface Water Critical Loads with PROFILE: Possibilities and Challenges. *Journal of environmental quality* **2003**, 32, 2290-2300.
8. Bey, I.; Jacob, D.; Yantosca, R.; Logan, J.; Field, B.; Fiore, A.; Li, Q.; Liu, H.; Mickley, L.; Schultz, M., Global modeling of tropospheric chemistry with assimilated meteorology: Model description and evaluation. *Journal of Geophysical research* **2001**, 106, (D19), 23073-23905.
9. Roy, P.-O.; Deschênes, L.; Margni, M., Life Cycle Impact Assessment of Terrestrial Acidification: Modeling Spatially Explicit Soil Sensitivity at the Global Scale. *Environmental science & technology* **2012**, 46, (15), 8270–8278.
10. Batjes, N. *ISRIC-Wise derived soil properties on a 5 by 5 arc-minutes global grid (version 1.1)*; Report 2006/02, ISRIC-World Soil Information, Wageningen (with data set): 2006; p 55.
11. Rawls, W. J.; Brakensiek, D. L.; Saxton, K. E., Estimation of soil water properties. *Transactions of the ASAE* **1982**, 25, (5), 1316-1320 & 1328.
12. Aherne, J.; Sverdrup, H.; Farrell, E. P.; Cummins, T., Application of the SAFE model to a Norway spruce stand at Ballyhooly, Ireland. *Forest Ecology and Management* **1998**, 101, (1-3), 331-338.
13. Alveteg, M.; Walse, C.; Sverdrup, H., Evaluating simplifications used in regional applications of the SAFE and MAKEDEP models. *Ecological modelling* **1997**, 107, 265-277.
14. Hodson, M.; Langan, S.; Wilson, M., A sensitivity analysis of the PROFILE model in relation to the calculation of soil weathering rates. *Applied Geochemistry* **1996**, 11, 835-844.
15. Jönsson, C.; Warfvinge, P.; Sverdrup, H., Uncertainty in predicting weathering rate and environmental stress factors with the PROFILE model. *Water, Air, & Soil Pollution* **1995**, 81, 1-13.

16. Reynolds, B., Predicting soil acidification trends in Plynlimon using the SAFE model. *Hydrology and Earth System Sciences* **1997**, 1, (3), 717-728.
17. Duan. L; Huang. Y; Hao. J; Xie. S; Hou. M, Vegetation uptake of nitrogen and base cations in China and its role in soil acidification. *Science of total environment* **2004**, 330, 187-198.
18. Olson, D. M.; E. Dinerstein; E.D. Wikramanayake; N.D. Burgess; G.V.N. Powell; E.C. Underwood; J.A. D'amico; I. Itoua; H.E. Strand; J.C. Morrison; C.J. Loucks; T.F. Allnutt; T.H. Ricketts; Y. Kura; J.F. Lamoreux; W.W.Wettengel; P. Hedao; Kassem., K. R., Terrestrial Ecoregions Base Global Dataset In WWF: 2001.
19. Natural Ressources Conservation Service, Soil Survey Laboratory Soil Characterization Data Query Interface. In United States Departement of Agriculture: 2009.
20. Reich, P.; Eswaran, H., Global Soil Regions Map. In Natural Resources Conservation Service: 2005.
21. Bouwman; al, A Global analysis of acidification and eutrophication of terrestrial ecosystems. *Water, Air, & Soil Pollution* **2002**, 141, 349-382.
22. Roy, P.-O.; Huijbregts, M. A. J.; Deschênes, L.; Margni, M., Spatially-differentiated atmospheric source-receptor relationships for nitrogen oxides, sulfur oxides and ammonia emissions at the global scale for life cycle impact assessment. *Atmospheric Environment* **2012**.

ANNEXE 6 – Résultats complémentaires du chapitre 8

Analyse de l'inventaire

Tableau A6.1: Flux économiques relié au cycle de vie des panneaux de calandre en acier, en composite, en aluminium et en aluminium recyclé pour le scénario de base

Flux économiques	Procédé SimaPro	Quantité
Panneau de calandre en acier		
Acier	Steel, low-alloyed, at plant/RER	10 kg
Électricité	Electricity, production mix UCE/UCTE	19.7 kWh
Énergie	Light fuel oil, burned in boiler 100kW, non-modulating/CH	98.2 MJ
Opération	Operation, voiture Européenne moyenne	1104 km
Élimination	Disposal, steel 0% water, to inert material landfill/CH	10 kg
Panneau de calandre en composite		
Polypropylène	Polypropylene, granulate, at plant/RER	7 kg
Électricité	Electricity, production mix UCE/UCTE	4.7 kWh
Énergie	Light fuel oil, burned in boiler 100kW, non-modulating/CH	23.9 MJ
Opération	Operation, voiture Européenne moyenne	772.8 km
Élimination	Disposal, polypropylene, 15.9% water, to municipal incineration plant/CH	7 kg
Panneau de calandre en aluminium		
Aluminium	Aluminium, primary, at plant/RER	3.8 kg
Électricité	Electricity, production mix UCE/UCTE	15.2 kWh
Énergie	Light fuel oil, burned in boiler 100kW, non-modulating/CH	76.9 MJ
Opération	Operation, voiture Européenne moyenne	419.52 km
Élimination	Disposal, aluminium, 0% water, to sanitary landfill/CH	3.8 kg
Panneau de calandre en aluminium recyclé		
Aluminium recyclé	Aluminium, secondary, from old scrap, at plant/RER	3.8 kg
Électricité	Electricity, production mix UCE/UCTE	15.2 kWh
Énergie	Light fuel oil, burned in boiler 100kW, non-modulating/CH	76.9 MJ
Opération	Operation, voiture Européenne moyenne	419.52 km
Élimination	Disposal, aluminium, 0% water, to sanitary landfill/CH	3.8 kg

Tableau A6.2: Flux économiques supplémentaires pour le scénario « réaliste »

Flux économiques	Procédé SimaPro	Quantité
Production Europe		
Transport camion intérieur Europe	Transport, lorry >32t, EURO5/RER	50 km
Transport élimination	Transport, municipal waste collection, lorry 21 t/Ch	50 km
Production Chine		
Transport camion lieu de production- port Chine	Transport, lorry >32t, EURO5/RER	50 km
Transport port Chine-Europe	Transport, transoceanic freight ship/OCE	20 468 km
Transport camion intérieur Europe	Transport, lorry >32t, EURO5/RER	50 km
Transport élimination	Transport, municipal waste collection, lorry 21 t/Ch	50 km
Production Mexique		
Transport camion lieu de production- port Mexique	Transport, lorry >32t, EURO5/RER	50 km
Transport bateau Mexique-Europe	Transport, transoceanic freight ship/OCE	9 453 km
Transport camion intérieur Europe	Transport, lorry >32t, EURO5/RER	50 km
Transport élimination	Transport, municipal waste collection, lorry 21 t/Ch	50 km
Production Argentine		
Transport camion lieu de production- port Argentine	Transport, lorry >32t, EURO5/RER	50 km
Transport bateau Argentine-Europe	Transport, transoceanic freight ship/OCE	11 744 km
Transport camion intérieur Europe	Transport, lorry >32t, EURO5/RER	50 km
Transport élimination	Transport, municipal waste collection, lorry 21 t/Ch	50 km
Production Canada		
Transport camion lieu de production- port Canada	Transport, lorry >32t, EURO5/RER	50 km
Transport bateau Canada-Europe	Transport, transoceanic freight ship/OCE	6 632 km
Transport camion intérieur Europe	Transport, lorry >32t, EURO5/RER	50 km
Transport élimination	Transport, municipal waste collection, lorry 21 t/Ch	50 km
Production Indonésie		
Transport camion lieu de production- port Canada	Transport, lorry >32t, EURO5/RER	50 km
Transport bateau Indonésie-Europe	Transport, transoceanic freight ship/OCE	15 831 km
Transport camion intérieur Europe	Transport, lorry >32t, EURO5/RER	50 km
Transport élimination	Transport, municipal waste collection, lorry 21 t/Ch	50 km

Tableau A6.3: Flux élémentaires des NO_x, NH₃, SO₂ et SO₄ reliés au cycle de vie des panneaux de calandre en acier, en composite, en aluminium et en aluminium recyclé tel que fourni par SimaPro

	Flux élémentaires pour le cycle de vie du panneau en :	NO_x (g)	NH₃ (g)	SO₂ (g)	SO₄ (g)
Production	Acier	61.4	1.03	83.7	0.284
	Composite	29.1	0.039	37.3	0.037
	Aluminium	94.8	1.16	180	0.469
	Aluminium recyclé	29.0	0.66	49.4	0.027
Opération	Acier	752	23	283	0.252
	Composite	527	16.1	198	0.176
	Aluminium	286	8.73	108	0.095
	Aluminium recyclé	286	8.73	108	0.095
Élimination	Acier	0.613	0.001	0.094	0.000
	Composite	2.67	0.062	0.129	0.001
	Aluminium	0.531	0.003	0.110	0.0001
	Aluminium recyclé	0.531	0.003	0.110	0.0001
Transport océanique Chine-Europe	Acier	29.3	0.215	27.7	0.007
	Composite	20.5	0.150	19.4	0.005
	Aluminium	11.1	0.082	10.5	0.003
	Aluminium recyclé	11.1	0.082	10.5	0.003
Transport océanique Mexique-Europe	Acier	13.5	0.099	12.8	0.003
	Composite	9.47	0.069	8.95	0.002
	Aluminium	5.14	0.038	4.86	0.001
	Aluminium recyclé	5.14	0.038	4.86	0.001
Transport océanique Argentine-Europe	Acier	16.8	0.123	15.9	0.004
	Composite	11.8	0.086	11.1	0.003
	Aluminium	6.39	0.047	6.04	0.001
	Aluminium recyclé	6.39	0.047	6.04	0.001
Transport océanique Canada-Europe	Acier	9.49	0.070	8.97	0.002
	Composite	6.64	0.049	6.28	0.002
	Aluminium	3.61	0.026	3.41	0.001
	Aluminium recyclé	3.61	0.026	3.41	0.001
Transport océanique Indonésie-Europe	Acier	22.7	0.17	21.4	0.005
	Composite	15.9	0.11	15.0	0.004
	Aluminium	8.6	0.06	8.12	0.002
	Aluminium recyclé	8.6	0.06	8.12	0.002
Transport continental	Acier	0.387	0.001	0.115	0.0004
	Composite	0.271	0.001	0.081	0.0003
	Aluminium	0.147	0.0006	0.044	0.0001
	Aluminium recyclé	0.147	0.0006	0.044	0.0001
Transport élimination	Acier	4.21	0.006	0.644	0.001
	Composite	2.95	0.004	0.451	0.0007
	Aluminium	1.6	0.002	0.245	0.0004
	Aluminium recyclé	1.6	0.002	0.245	0.0004

Analyse de contribution par processus du cycle de vie

Acidification terrestre :

Tableau A6.4: Contributions aux impacts potentiels de l'acidification terrestre par étapes du cycle de vie pour le scénario réaliste pour une production en Europe

Panneau	Production (%)	Opération (%)	Transport océanique (%)	Transport continental (%)	Transport élimination (%)	Élimination (%)
Évaluation Problèmes						
Acier	15.38	84.52	0.00	0.04	0.02	0.04
Composite	10.31	89.38	0.00	0.04	0.02	0.26
Aluminium	48.93	50.97	0.00	0.02	0.01	0.07
Aluminium recyclé	21.26	78.58	0.00	0.04	0.02	0.11
Évaluation Dommages						
Acier	15.42	84.19	0.00	0.04	0.31	0.05
Composite	10.36	89.01	0.00	0.04	0.33	0.26
Aluminium	49.02	50.71	0.00	0.02	0.19	0.07
Aluminium recyclé	21.29	78.28	0.00	0.04	0.29	0.11

Tableau A6.5: Contributions aux impacts potentiels de l'acidification terrestre par étapes du cycle de vie pour le scénario réaliste pour une production en Chine

Panneau	Production (%)	Opération (%)	Transport océanique (%)	Transport continental (%)	Transport élimination (%)	Élimination (%)
Évaluation Problèmes						
Acier	13.48	83.92	2.51	0.04	0.02	0.04
Composite	9.01	88.05	2.63	0.04	0.02	0.25
Aluminium	44.94	53.37	1.59	0.02	0.01	0.07
Aluminium recyclé	18.71	78.79	2.35	0.04	0.02	0.11
Évaluation Dommages						
Acier	10.06	86.03	3.51	0.03	0.32	0.05
Composite	6.65	89.09	3.64	0.03	0.33	0.26
Aluminium	36.88	60.34	2.45	0.02	0.22	0.08
Aluminium recyclé	14.15	82.07	3.33	0.03	0.30	0.11

Tableau A6.6: Contributions aux impacts potentiels de l'acidification terrestre par étapes du cycle de vie pour le scénario réaliste pour une production au Mexique

Panneau	Production (%)	Opération (%)	Transport océanique (%)	Transport continental (%)	Transport élimination (%)	Élimination (%)
Évaluation Problèmes						
Acier	6.75	92.67	0.48	0.03	0.02	0.05
Composite	4.35	94.84	0.49	0.03	0.02	0.27
Aluminium	27.79	71.70	0.37	0.03	0.02	0.10
Aluminium recyclé	9.79	89.58	0.46	0.03	0.02	0.12
Évaluation Dommages						
Acier	4.39	94.71	0.47	0.03	0.35	0.05
Composite	2.78	96.08	0.48	0.03	0.35	0.28
Aluminium	19.09	80.08	0.40	0.03	0.29	0.11
Aluminium recyclé	6.34	92.71	0.46	0.03	0.34	0.13

Tableau A6.7: Contributions aux impacts potentiels de l'acidification terrestre par étapes du cycle de vie pour le scénario réaliste pour une production en Argentine

Panneau	Production (%)	Opération (%)	Transport océanique (%)	Transport continental (%)	Transport élimination (%)	Élimination (%)
Évaluation Problèmes						
Acier	6.81	92.35	0.74	0.03	0.02	0.05
Composite	4.43	94.49	0.76	0.03	0.02	0.27
Aluminium	28.50	70.80	0.57	0.02	0.02	0.10
Aluminium recyclé	9.97	89.15	0.72	0.03	0.02	0.12
Évaluation Dommages						
Acier	4.07	94.17	1.34	0.02	0.35	0.05
Composite	2.62	95.38	1.35	0.02	0.35	0.27
Aluminium	18.52	79.92	1.13	0.02	0.29	0.11
Aluminium recyclé	5.98	92.23	1.31	0.02	0.34	0.13

Tableau A6.8: Contributions aux impacts potentiels de l'acidification terrestre par étapes du cycle de vie pour le scénario réaliste pour une production au Canada

Panneau	Production	Opération	Transport océanique	Transport continental	Transport élimination	Élimination
Évaluation Problèmes						
Acier	23.58	76.04	0.28	0.05	0.02	0.04
Composite	16.25	83.14	0.31	0.05	0.02	0.24
Aluminium	62.15	37.63	0.14	0.02	0.01	0.05
Aluminium recyclé	31.61	68.00	0.25	0.03	0.01	0.09
Évaluation Dommages						
Acier	21.95	77.39	0.29	0.04	0.29	0.04
Composite	15.03	84.06	0.32	0.05	0.31	0.24
Aluminium	60.06	39.57	0.15	0.02	0.15	0.05
Aluminium recyclé	29.69	69.65	0.26	0.04	0.26	0.10

Tableau A6.9: Contributions aux impacts potentiels de l'acidification terrestre par étapes du cycle de vie pour le scénario réaliste pour une production en Indonésie

Panneau	Production	Opération	Transport océanique	Transport continental	Transport élimination	Élimination
Évaluation Problèmes						
Acier	4.21	93.53	2.16	0.02	0.02	0.05
Composite	2.72	94.77	2.19	0.02	0.02	0.27
Aluminium	18.98	79.06	1.82	0.02	0.02	0.11
Aluminium recyclé	6.16	91.57	2.11	0.02	0.02	0.12
Évaluation Dommages						
Acier	0.56	95.98	3.03	0.02	0.35	0.05
Composite	0.36	95.96	3.03	0.02	0.35	0.28
Aluminium	2.78	93.78	2.95	0.02	0.35	0.13
Aluminium recyclé	0.81	95.68	3.01	0.02	0.35	0.13

Acidification aquatique :

Tableau A6.10: Contributions aux impacts potentiels de l'acidification aquatique par étapes du cycle de vie pour le scénario réaliste pour une production en Europe

Panneau	Production (%)	Opération (%)	Transport océanique (%)	Transport continental (%)	Transport élimination (%)	Élimination (%)
Évaluation Problèmes						
Acier	15.63	84.26	0.00	0.04	0.02	0.05
Composite	10.59	89.09	0.00	0.04	0.02	0.26
Aluminium	49.46	50.44	0.00	0.02	0.02	0.07
Aluminium recyclé	21.52	78.31	0.00	0.04	0.02	0.11
Évaluation Dommages						
Acier	15.67	83.92	0.00	0.04	0.32	0.05
Composite	10.62	88.74	0.00	0.04	0.34	0.25
Aluminium	49.56	50.16	0.00	0.02	0.19	0.07
Aluminium recyclé	21.58	77.97	0.00	0.02	0.30	0.11

Tableau A6.11: Contributions aux impacts potentiels de l'acidification aquatique par étapes du cycle de vie pour le scénario réaliste pour une production en Chine

Panneau	Production (%)	Opération (%)	Transport océanique (%)	Transport continental (%)	Transport élimination (%)	Élimination (%)
Évaluation Problèmes						
Acier	1.26	97.09	1.56	0.02	0.02	0.05
Composite	0.80	97.31	1.56	0.02	0.02	0.28
Aluminium	6.40	91.96	1.47	0.02	0.02	0.13
Aluminium recyclé	1.87	96.41	1.54	0.02	0.02	0.14
Évaluation Dommages						
Acier	0.54	98.01	1.00	0.02	0.38	0.05
Composite	0.34	97.98	1.00	0.02	0.38	0.28
Aluminium	2.94	95.57	0.97	0.02	0.37	0.13
Aluminium recyclé	0.83	97.65	0.99	0.02	0.37	0.14

Tableau A6.12: Contributions aux impacts potentiels de l'acidification aquatique par étapes du cycle de vie pour le scénario réaliste pour une production au Mexique

Panneau	Production (%)	Opération (%)	Transport océanique (%)	Transport continental (%)	Transport élimination (%)	Élimination (%)
Évaluation Problèmes						
Acier	2.85	97.00	0.05	0.02	0.02	0.05
Composite	1.83	97.79	0.05	0.02	0.02	0.28
Aluminium	13.39	86.40	0.04	0.02	0.02	0.12
Aluminium recyclé	4.17	95.59	0.05	0.02	0.02	0.13
Évaluation Dommages						
Acier	3.24	96.31	0.00	0.02	0.37	0.05
Composite	2.08	97.24	0.00	0.02	0.37	0.28
Aluminium	15.81	83.73	0.00	0.02	0.32	0.12
Aluminium recyclé	4.90	94.57	0.00	0.02	0.36	0.13

Tableau A6.13: Contributions aux impacts potentiels de l'acidification aquatique par étapes du cycle de vie pour le scénario réaliste pour une production en Argentine

Panneau	Production (%)	Opération (%)	Transport océanique (%)	Transport continental (%)	Transport élimination (%)	Élimination (%)
Évaluation Problèmes						
Acier	1.18	98.60	0.12	0.02	0.02	0.06
Composite	0.75	98.80	0.12	0.02	0.02	0.28
Aluminium	6.12	93.59	0.11	0.02	0.02	0.13
Aluminium recyclé	1.78	97.52	0.12	0.02	0.02	0.14
Évaluation Dommages						
Acier	0.02	99.52	0.01	0.02	0.38	0.06
Composite	0.01	99.30	0.01	0.02	0.38	0.28
Aluminium	0.09	99.36	0.01	0.02	0.38	0.14
Aluminium recyclé	0.02	99.43	0.01	0.02	0.38	0.14

Tableau A6.14: Contributions aux impacts potentiels de l'acidification aquatique par étapes du cycle de vie pour le scénario réaliste pour une production au Canada

Panneau	Production	Opération	Transport océanique	Transport continental	Transport élimination	Élimination
Évaluation Problèmes						
Acier	32.27	67.60	0.03	0.05	0.02	0.04
Composite	23.21	76.46	0.03	0.06	0.02	0.22
Aluminium	72.06	27.87	0.01	0.02	0.01	0.04
Aluminium recyclé	41.80	58.04	0.03	0.04	0.01	0.08
Évaluation Dommages						
Acier	42.10	57.06	0.00	0.04	0.22	0.03
Composite	31.55	67.94	0.00	0.05	0.26	0.19
Aluminium	80.38	19.51	0.00	0.01	0.07	0.03
Aluminium recyclé	52.89	46.82	0.00	0.03	0.18	0.07

Tableau A6.15: Contributions aux impacts potentiels de l'acidification aquatique par étapes du cycle de vie pour le scénario réaliste pour une production en Indonésie

Panneau	Production	Opération	Transport océanique	Transport continental	Transport élimination	Élimination
Évaluation Problèmes						
Acier	0.11	98.57	1.22	0.02	0.02	0.06
Composite	0.07	98.38	1.22	0.02	0.02	0.28
Aluminium	0.54	98.06	1.22	0.02	0.02	0.14
Aluminium recyclé	0.15	98.45	1.22	0.02	0.02	0.14
Évaluation Dommages						
Acier	0.04	98.73	0.78	0.02	0.38	0.06
Composite	0.02	98.52	0.78	0.02	0.38	0.28
Aluminium	0.21	98.48	0.78	0.02	0.38	0.14
Aluminium recyclé	0.06	98.63	0.78	0.02	0.38	0.14

Tableau A6.16: Contributions aux impacts potentiels problèmes de l'acidification terrestre, par polluant, pour le scénario « réaliste »

Lieu de production	Panneau	NO _x	NH ₃	SO ₂	SO ₄
Europe	Acier	41.30	6.19	52.45	0.05
	Composite	42.82	6.31	50.85	0.03
	Aluminium	30.64	4.04	65.24	0.09
	Aluminium recyclé	39.08	5.91	54.98	0.03
Chine	Acier	41.59	6.09	52.27	0.05
	Composite	42.80	6.23	50.94	0.03
	Aluminium	32.42	4.10	63.41	0.08
	Aluminium recyclé	39.73	5.82	54.42	0.03
Mexique	Acier	43.09	6.66	50.22	0.04
	Composite	43.94	6.69	49.34	0.03
	Aluminium	35.96	5.37	58.61	0.06
	Aluminium recyclé	41.89	6.52	51.96	0.03
Argentine	Acier	42.58	6.53	50.85	0.04
	Composite	43.55	6.66	49.76	0.03
	Aluminium	34.28	5.07	60.58	0.07
	Aluminium recyclé	41.25	6.32	52.40	0.03
Canada	Acier	38.31	5.83	55.80	0.06
	Composite	40.71	5.88	53.38	0.03
	Aluminium	24.82	3.36	71.72	0.10
	Aluminium recyclé	35.08	5.50	59.39	0.03
Indonésie	Acier	43.52	6.62	49.83	0.03
	Composite	44.07	6.69	49.22	0.03
	Aluminium	38.71	5.65	55.59	0.05
	Aluminium recyclé	42.76	6.49	50.72	0.03

Tableau A6.17: Contributions aux impacts potentiels dommages de l'acidification terrestre, par polluant, pour le scénario « réaliste »

Lieu de production	Panneau	NOx	NH3	SO2	SO4
Europe	Acier	42.20	5.01	52.74	0.05
	Composite	43.74	5.10	51.12	0.03
	Aluminium	31.22	3.26	65.43	0.09
	Aluminium recyclé	39.92	4.78	55.27	0.03
Chine	Acier	42.33	5.03	52.60	0.04
	Composite	43.23	5.10	51.64	0.03
	Aluminium	34.88	3.68	61.37	0.07
	Aluminium recyclé	40.92	4.86	54.20	0.03
Mexique	Acier	45.04	5.56	49.37	0.03
	Composite	45.55	5.50	48.92	0.03
	Aluminium	40.95	4.95	54.05	0.05
	Aluminium recyclé	44.33	5.53	50.12	0.03
Argentine	Acier	44.31	5.41	50.24	0.03
	Composite	44.90	5.46	49.62	0.03
	Aluminium	39.27	4.65	56.03	0.05
	Aluminium recyclé	43.53	5.31	51.13	0.03
Canada	Acier	39.20	4.84	55.89	0.06
	Composite	41.62	4.83	53.52	0.03
	Aluminium	25.21	2.90	71.79	0.10
	Aluminium recyclé	35.99	4.61	59.38	0.03
Indonésie	Acier	44.70	5.48	49.80	0.03
	Composite	44.85	5.49	49.63	0.03
	Aluminium	44.25	5.34	50.38	0.03
	Aluminium recyclé	44.59	5.44	49.94	0.03

Tableau A6.18: Contributions aux impacts potentiels problèmes de l'acidification aquatique, par polluant, pour le scénario « réaliste »

Lieu de production	Panneau	NO _x	NH ₃	SO ₂	SO ₄
Europe	Acier	44.55	2.16	53.23	0.05
	Composite	46.17	2.20	51.59	0.03
	Aluminium	32.80	1.40	65.71	0.09
	Aluminium recyclé	42.13	2.06	55.77	0.03
Chine	Acier	48.00	2.40	49.56	0.03
	Composite	48.29	2.41	49.27	0.03
	Aluminium	46.00	2.29	51.57	0.04
	Aluminium recyclé	47.69	2.39	49.90	0.03
Mexique	Acier	48.01	2.43	49.53	0.03
	Composite	48.45	2.41	49.11	0.03
	Aluminium	44.36	2.23	53.37	0.04
	Aluminium recyclé	47.43	2.41	50.13	0.03
Argentine	Acier	48.35	2.43	49.19	0.03
	Composite	48.65	2.44	48.89	0.03
	Aluminium	46.26	2.32	51.38	0.04
	Aluminium recyclé	48.02	2.42	49.54	0.04
Canada	Acier	37.21	1.94	60.77	0.08
	Composite	40.76	1.90	57.30	0.04
	Aluminium	20.54	1.02	78.32	0.12
	Aluminium recyclé	32.79	1.82	65.36	0.03
Indonésie	Acier	48.48	2.43	49.06	0.03
	Composite	48.63	2.43	48.91	0.03
	Aluminium	48.29	2.41	49.27	0.03
	Aluminium recyclé	48.40	2.42	49.15	0.03

Tableau A6.19: Contributions aux impacts potentiels dommages de l'acidification aquatique, par polluant, pour le scénario « réaliste »

Lieu de production	Panneau	NO _x	NH ₃	SO ₂	SO ₄
Europe	Acier	44.23	1.96	53.76	0.05
	Composite	45.85	2.00	52.12	0.03
	Aluminium	32.47	1.27	66.18	0.09
	Aluminium recyclé	41.81	1.87	56.29	0.03
Chine	Acier	47.78	2.20	50.00	0.03
	Composite	48.00	2.20	49.77	0.03
	Aluminium	46.59	2.13	51.24	0.03
	Aluminium recyclé	47.57	2.18	50.22	0.03
Mexique	Acier	46.98	2.16	50.82	0.04
	Composite	47.66	2.19	50.12	0.03
	Aluminium	40.93	1.88	57.14	0.05
	Aluminium recyclé	46.11	2.12	51.74	0.03
Argentine	Acier	48.50	2.23	49.24	0.03
	Composite	48.64	2.23	49.10	0.03
	Aluminium	48.40	2.22	49.35	0.03
	Aluminium recyclé	48.43	2.22	49.32	0.03
Canada	Acier	28.20	1.30	70.40	0.11
	Composite	33.38	1.53	65.06	0.04
	Aluminium	9.67	0.44	89.74	0.14
	Aluminium recyclé	22.93	1.05	75.98	0.03
Indonésie	Acier	48.12	2.21	49.64	0.03
	Composite	48.26	2.21	49.50	0.03
	Aluminium	47.97	2.20	49.80	0.03
	Aluminium recyclé	48.04	2.20	49.73	0.03